

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-251240

(43) 公開日 平成10年(1998) 9月22日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	F I
C 0 7 D 277/30		C 0 7 D 277/30
A 0 1 N 43/26		A 0 1 N 43/26
43/78		43/78
C 0 7 D 213/82		C 0 7 D 213/82
231/14		231/14
		Z
審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 19 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願平9-338820
(62) 分割の表示 特願平9-59106の分割
(22) 出願日 平成9年(1997) 3月13日

(71) 出願人 000005887
三井化学株式会社
東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
(72) 発明者 吉川 幸宏
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内
(72) 発明者 富谷 完治
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内
(72) 発明者 勝田 裕之
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内

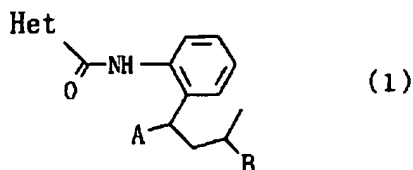
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 置換カルボン酸アニリド誘導体およびこれを有効成分とする農園芸用殺菌剤

(57) 【要約】

【課題】 本発明は各種作物の病原菌に対して広い病害スペクトラムを有し、しかも現在深刻化している耐性菌問題を解決する新しい農園芸用殺菌剤を提供することを目的とする。

【解決手段】 以下の一般式(1)

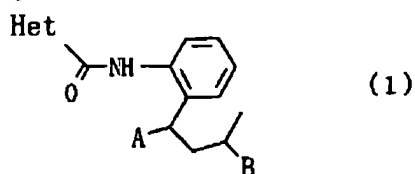


〔式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Hetは窒素原子、酸素原子、硫黄原子のうちの少なくとも一つを含む5員ないし6員の複素環を表す〕で表される置換カルボン酸アニリド誘導体。

【特許請求の範囲】

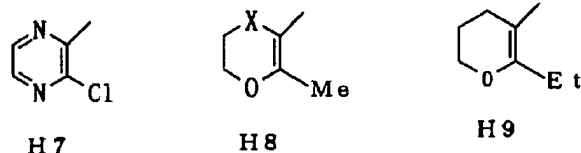
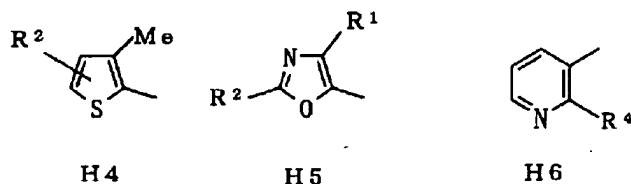
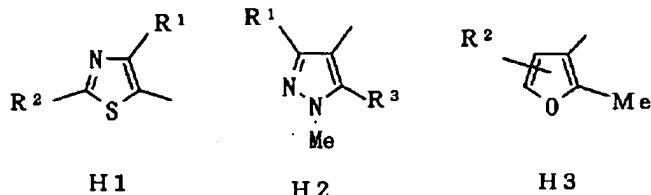
【請求項1】 一般式(1)(化1)

【化1】



〔式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Hetは以下のH1からH9(化2)

【化2】



〔式中、R¹はトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、メチル基またはエチル基であり、R²は水素原子またはメチル基であり、R³は水素原子または塩素原子であり、R⁴はトリフルオロメチル基、メチル基、塩素原子またはメチルチオ基であり、Xは硫黄原子または基-CH₂-である(但し、HetがH1である場合において、R¹がトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基またはメチル基であり且つR²がメチル基である場合、HetがH2である場合において、R¹がトリフルオロメチル基またはジフルオロメチル基であり且つR³が水素原子である場合を除く)〕で表される複素環式基である〕で表される置換カルボン酸アニリド誘導体。

【請求項2】 HetがH1またはH9である請求項1記載の置換カルボン酸アニリド誘導体。

【請求項3】 請求項1または請求項2記載の置換カルボン酸アニリド誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤。

【請求項4】 請求項1または請求項2記載の置換カルボン酸アニリド誘導体を使用して植物病害を防除する方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規な置換カルボン酸アニリド誘導体、これを有効成分として含有する農園芸用殺菌剤およびこれによる植物病害防除方法に関する。

【0002】

【従来の技術】近年開発された選択的作用を示す農園芸用殺菌剤は、それまで使用されてきた非選択的な農園芸用殺菌剤と異なり低薬量で安定した効果を示す。しかし、これら農園芸用殺菌剤は繰り返し使用した場合に薬剤耐性菌が出現し、効力の低下を来すという問題がある。例えば、ベンズイミダゾール系の殺菌剤は広い殺菌スペクトラムを有し、灰色かび病に対しても優れた効果を示すが、1970年代に入って薬剤耐性菌が出現し、大幅な効力低下を引き起こした。これに替わるものとしてジカルボキシイミド系の殺菌剤が注目を浴びたが、1980年代に入って該殺菌剤に対しても薬剤耐性菌が出現した。灰色かび病耐性菌の防除対策はわが国のみならず世界的にも大きな問題となっている。

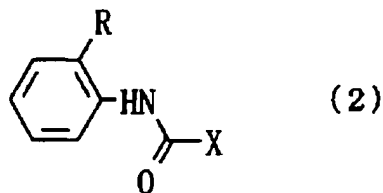
【0003】一方、アゾール系の殺菌剤は殺菌スペクトラムが広く、特に各種作物のうどんこ病、さび病、リンゴ、ナシの黒星病などにこれまでにない低薬量で効果を示す優れた薬剤である。しかし最近になって耐性菌の出現による該殺菌剤の大幅な効力の低下が問題になっている。このように薬剤耐性菌の出現は選択性的作用を示す農園芸用殺菌剤にとって避けては通れない問題となっている。従って、新しい薬剤の開発が急務となっている。

【0004】また、昨今は環境問題の上からも少量で効果のある薬剤が求められているが、実際には植物は多種類の病害に感染する。従って、通常これらの病害を防除するには複数の薬剤を使用する必要がある、個々の薬剤量は少なくとも全体の使用量はかなり多くなってしまう。このような既存の薬剤の問題点に対して、1) 低薬量でも効果が高く、2) 薬剤耐性菌に対しても効果があり、3) 一つの薬剤で多種類の病害を防除できる薬剤を開発できれば、効力のみならず環境への負荷も少なく、意義が大きいと考えられる。

【0005】ところで、従来から芳香族カルボン酸アニリド誘導体には殺菌活性を示すものが多く知られている。最近では例えば、特開平5-221994号公報には以下の一般式(2)(化3)

【0006】

【化3】



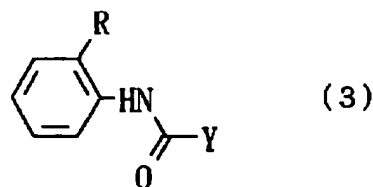
[式中、Rが場合によりハロゲンで置換されていてもよい炭素数2～12アルキル、場合によりハロゲンで置換されていてもよい炭素数3～12アルケニル、炭素数3～6アルキニル、場合によりハロゲンで置換されていてもよい炭素数2～12アルコキシ、場合によりハロゲンで置換されていてもよい炭素数3～12アルケニルオキシ、炭素数3～12アルキニルオキシ、場合により炭素数1～4アルキルで置換されていてもよい炭素数3～6シクロアルキル、場合により炭素数1～4アルキルで置換されていてもよい炭素数4～6シクロアルケニル、場合により炭素数1～4アルキルで置換されていてもよい炭素数5～6シクロアルキルオキシ、場合により炭素数1～4アルキルで置換されていてもよい炭素数5～6シクロアルケニルオキシ、場合により炭素数1～4アルキル、炭素数1～4アルコキシ、炭素数1～4アルキルチオ、ハロゲンで置換されていてもよいフェニルを意味

し、Xが2位においてハロゲン、メチル、トリフルオロメチル、塩素、臭素、沃素により置換されているフェニル、2-メチル-5、6-ジヒドロピラン-3-イル、2-メチル-5、6-ジヒドロ-1、4-オキサチン-3-イル、2-メチル-5、6-ジヒドロ-1、4-オキサチン-3-イル-4-オキシド、2-メチル-5、6-ジヒドロ-1、4-オキサチン-3-イル-4、4-ジオキシド、4および5位において沃素もしくはメチルにより置換されている2-メチルフラン-3-イル、2および4位において沃素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換されているチアゾール-5-イル、2および5位において沃素、メチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換されているチアゾール-4-イル、3および5位においてメチル、塩素、トリフルオロメチルにより置換されている1-メチル-ピラゾール-4-イル、2および4位において沃素、メチル、塩素により置換されているオキサゾール-5-イルを意味する]で表されるカルボン酸アニリド誘導体が灰色かび病に効果を有することが記載されている。

【0007】更に、特開平6-199803号公報には以下の一般式(3)(化4)

【0008】

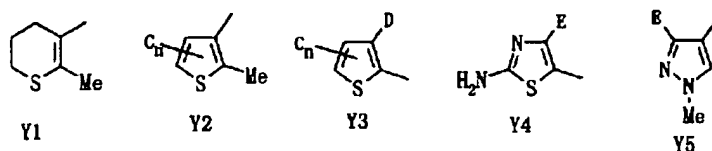
【化4】



[Rが部分的もしくは完全にハロゲン化されていてもよい炭素数3～12アルキル、炭素数2～12アルコキシ、炭素数3～12アルケニル、炭素数3～12アルケニルオキシ、炭素数3～6アルキニル、炭素数3～6アルキニルオキシ、1から3個の炭素数1～4アルキルを持っていてもよい炭素数3～7シクロアルキル、炭素数4～7シクロアルケニル、炭素数3～7シクロアルキルオキシ、炭素数4～7シクロアルケニルオキシ、1から5個のハロゲンおよび/あるいは1から3個の炭素数1～4アルキル、炭素数1～4ハロアルキル、炭素数1～4アルコキシ、炭素数1～4ハロアルコキシ、炭素数1～4アルキルチオ、炭素数1～4ハロアルキルチオを持っていてもよいフェニルを意味し、Yが以下のY1からY5(化5)

【0009】

【化5】



(式中、Cは水素あるいは炭素数1～4アルキルを、Dはハロゲンあるいは炭素数1～4アルキルを、Eは炭素数1～4アルキルあるいは炭素数1～4ハロアルキルを、nは1もしくは2を意味する)のいずれかで表される環式基を意味する]で表されるカルボン酸アニリド誘導体が灰色かび病に効果を有することが記載されている。

【0010】特開平5-221994号公報又は特開平6-199803号公報は上位概念として極めて広い範囲の化合物を包含しているが、実施例に記載の化合物は限られている。例えば、前記カルボン酸アニリド類においてアニリン環の2位の置換基がアルキル基であるものとして、公報の実施例および表に具体的に開示されているのは炭素数3～7の直鎖アルキル基；イソプロピル、sec-ブチル、tert-ブチル、1-メチルブチル、1-メチルヘキシルのように α 位で分岐したアルキル基；イソブチル、2-エチルブチル基のように β 位で分岐したアルキル基に限られており、 γ 位で分岐したアルキル基の例はない。

【0011】本発明者らはそこに具体的に開示された化合物について種々の植物病原菌に対する殺菌活性を試験したが、防除効果は灰色かび病の場合でも低く、うどんこ病、赤さび病およびイネいもち病などでは全く効果がないか、非常に弱い効果しか認められなかった。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明は従来技術と比較して低薬量でも優れた防除効果を示し、薬剤

耐性菌に対しても効果があり、一つの薬剤で多種類の病害を防除できる、更に作物に対しても安全な置換カルボン酸アニリド誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤、該誘導体を使用して植物病害を防除する方法を提供することを課題とする。

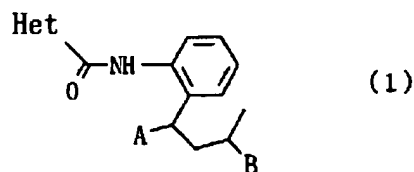
【0013】

【課題を解決するための手段】本発明者らは前記課題を解決するため、種々のカルボン酸アニリド誘導体の有する生理活性に興味を持って研究を進めた。その結果、アニリン環の2位の置換基が γ 位で分岐したアルキル基である新規なカルボン酸アニリド誘導体が、前記公報に記載された内容からは全く予想することのできない優れた防除効果を示すことを見出し、本研究を完成した。

【0014】すなわち、本発明は一般式(1)(化6)

【0015】

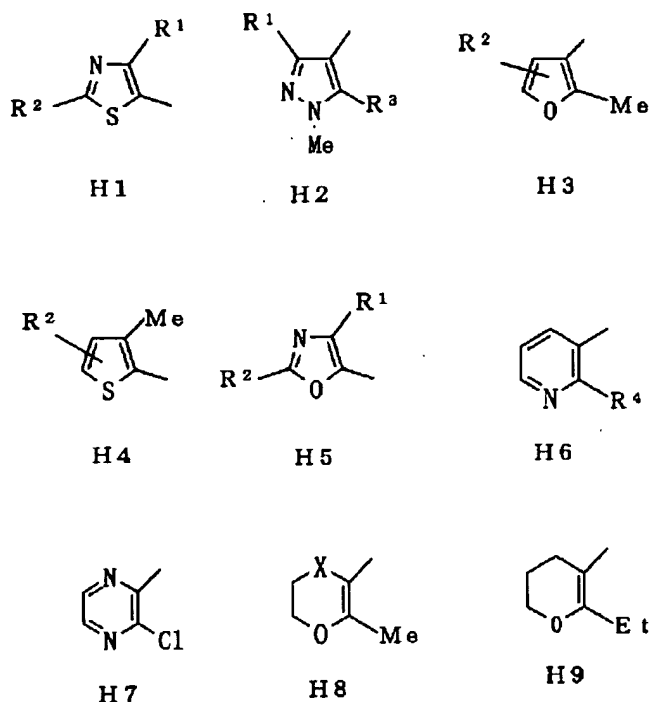
【化6】



【式中、Aは水素原子またはメチル基であり、Bはメチル基またはエチル基であり、Hetは以下のH1からH9(化7)

【0016】

【化7】



(式中、 R^1 はトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、メチル基またはエチル基であり、 R^2 は水素原子またはメチル基であり、 R^3 は水素原子または塩素原子であり、 R^4 はトリフルオロメチル基、メチル基、塩素原子またはメチルチオ基であり、 X は硫黄原子または基- CH_2 -である(但し、 Het がH1である場合において、 R^1 がトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基またはメチル基であり且つ R^2 がメチル基である場合、 Het がH2である場合において、 R^1 がトリフルオロメチル基またはジフルオロメチル基であり且つ R^3 が水素原子である場合を除く))で表される複素環式基である]で表される置換カルボン酸アニリド誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農薬用殺菌剤および該誘導体を使用して植物病害を防除する方法に関する。

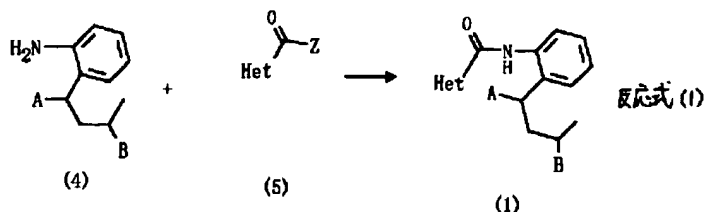
【0017】

【発明の実施の形態】本発明化合物はカルボン酸アニリドのアニリン環の2位に γ 位で分岐したアルキル基を導入したところに特徴がある。これらの特定の基を導入した意義は大きく、本発明の化合物は前記の公報に記載された化合物がほとんど防除効果を示さないか、または極めて弱い効果しか示さない植物病害に対して全く予想できないような優れた防除効果を示す。

【0018】本発明の一般式(1)(化6)で表される置換カルボン酸アニリド誘導体は新規な化合物であり、アニリン環の2位の置換基は、具体的には3-メチルブチル、1,3-ジメチルブチル、3-メチルペンチル、1,3-ジメチルペンチル基等の γ 位で分岐したアルキル基であり、特に好ましくは1,3-ジメチルブチル基である。

【0019】 Het として具体的には、H1の4位の R^1 がトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、メチル基またはエチル基であり、2位の R^2 は水素原子またはメチル基である5-チアゾリル基、例えば4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル基、2-メチル-4-エチル-5-チアゾリル基、4-エチル-5-チアゾリル基等；H2の3位の R^1 がトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、メチル基またはエチル基であり、5位の R^3 が水素原子または塩素原子であり、1位にメチル基が置換した4-ピラゾリル基、例えば1,3-ジメチル-4-ピラゾリル基、5-クロロ-1,3-ジメチル-4-ピラゾリル基、5-クロロ-1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基、5-クロロ-1-メチル-3-ジフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-エチル-4-ピラゾリル基等；H3の2位にメチル基が置換し、4または5位の R^2 が水素原子またはメチル基である3-フリル基、例えば2-メチル-3-フリル基、2,5-ジメチル-3-フリル基、2,4-ジメチル-3-フリル基等；H4の3位にメチル基が置換し、4位または5位の R^2 が水素原子またはメチル基である2-チエニル基、例えば3-メチル-2-チエニル基、3,4-ジメチル-2-チエニル基、3,5-ジメチル-2-チエニル基等；H5の4位の R^1 がトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、メチル基またはエチル基であり、2位の R^2 が水素原子またはメチル基である5-オキサゾリル基、例えば2,4-ジメチル-5-オキサゾリル、4-メチル-5-オキサゾリル、2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-オキサゾリル基等；H6の2位の R^4 がトリフルオロメチル基等。

ル基、メチル基、塩素原子、メチルメルカプト基であるニコチニル基、例えば2-クロロ-ニコチニル基、2-メチルメルカプトニコチニル基等；H7である3-クロロ-2-ピラジニル基；H8のXが $-CH_2-$ 又は硫黄原子である2-メチル-5, 6-ジヒドロ-3-ピラニル基、2-メチル-5, 6-ジヒドロ-1, 4-オキサチン-3-イル基、H9の2-エチル-5, 6-ジヒドロ-3-ピラニル基等が挙げられるが、但し、H2においてA、Bがともにメチル基の場合において1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-ジフルオロメチル-4-ピラゾリル基を除く。また、本発明の化合物として特に好ましくは、4位



(式中、Het、A、Bは前記と同様の意味であり、Zは塩素原子、臭素原子、またはヨウ素原子を表す。) 本反応に使用される溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素；ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、アニソール等の芳香族類；ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類；アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類；酢酸エチル等のエステル類；ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素；ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性溶媒等が挙げられ、これらの混合溶媒も使用される。

【0022】本反応はまた塩基の存在下に行ってもよく、塩基として例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水酸化物；酸化カルシウム、酸化マグネシウム等のアルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物；水素化ナトリウム、水素化カルシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の水素化物；リチウムアミド、ナトリウムアミド等のアルカリ金属のアミド；炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸塩；炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸水素塩；メチルリチウム、ブチルリチウム、フェニルリチウム、メチルマグネ

シウムクロライド等のアルカリ金属アルキル；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-tert-ブトキシド、ジメトキシマグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド；トリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン、N-メチルピペリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等の種々の有機塩基類が挙げられ、特に好ましくはトリエチルアミン、ピリジンである。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(5)で表されるカルボン酸ハライド類に対して等モル%

【0020】本発明の一般式(1)で表される置換カルボン酸アニリド誘導体は以下の反応式(1)(化8)に示した公知の方法と類似の方法により、一般式(4)で表される置換アニリン類と一般式(5)で表されるカルボン酸ハライド類とを溶融状態または溶媒中で反応させることにより製造できる。

【0021】

【化8】

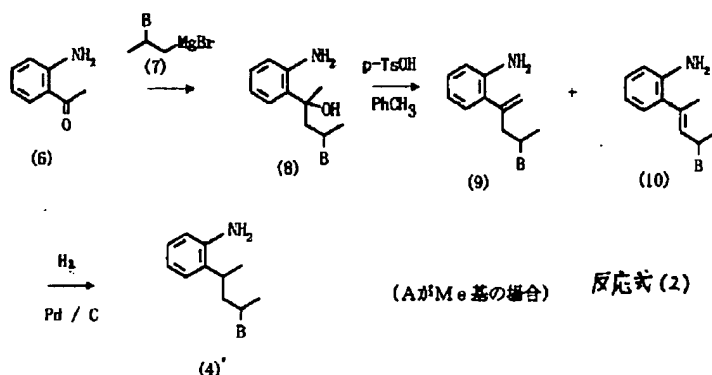
シウムクロライド等のアルカリ金属アルキル；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-tert-ブトキシド、ジメトキシマグネシウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド；トリエチルアミン、ピリジン、N、N-ジメチルアニリン、N-メチルピペリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等の種々の有機塩基類が挙げられ、特に好ましくはトリエチルアミン、ピリジンである。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(5)で表されるカルボン酸ハライド類に対して等モル%よりも5モル%から20モル%過剰に使用される。

【0023】上記一般式(4)で表される置換アニリン類と一般式(5)で表されるカルボン酸ハライド類は一般的には等モル量使用されるが、収率改善のため一方を他方に対して1モル%から20モル%過剰に使用することもある。反応温度は通常-20~150℃であり、好ましくは0~40℃である。反応時間は特に制限はないが、通常30分~5時間である。

【0024】次に本発明の中間体である一般式(4)で表される置換アニリン類の合成法について述べる。これらの化合物は例えば一般式(4)のAがメチル基の場合には以下の反応式(2)(化9)に示した方法により合成される。

【0025】

【化9】



(AがMe基の場合) 反応式(2)

(式中、Bは前記と同様の意味である)
即ち、式(6)のカルボニル化合物と式(7)のグリニャール試薬を反応させて式(8)のアルコール体とした後、触媒量のp-トルエンスルホン酸存在下、トルエン中で脱水して式(9)および式(10)のアルケン体を得、これをPd/炭素の存在下に接触還元することにより合成する。一般式(4)で表される置換アニリン類の合成法はこれらの方法に限定されるものではない。尚、一般式(4)において、AおよびBがメチル基である2-(1,3-ジメチルブチル)アニリンは新規な化合物である。

【0026】本発明の一般式(1)で表される化合物を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤は、イネのいもち病(*Pyricularia oryzae*)、ごま葉枯病(*Cochliobolus miyabeanus*)、紋枯病(*Rhizoctonia solani*)、馬鹿苗病(*Gibberella fujikuroi*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis* f.sp.*hordei*; f.sp.*tritici*)、斑葉病(*Pyrenophora graminea*)、網斑病(*Pyrenophora teres*)、赤かび病(*Gibberella zeae*)、さび病(*Puccinia striiformis*; *P. graminis*; *P. recondita*; *P. hordei*)、雪腐病(*Typhula* sp.; *Micronectriella nivalis*)、裸黒穂病(*Ustilago tritici*; *U. nuda*)、眼紋病(*Pseudocercospora helipotrichoides*)、雲形病(*Rhynchosporium secalis*)、葉枯病(*Septoria tritici*)、ふ枯病(*Leptosphaeria nodorum*)、ブドウのうどんこ病(*Uncinula necator*)、黒とう病(*Elsinoe ampelina*)、晩腐病(*Glomerella cingulata*)、さび病(*Phakopsora ampelopsidis*)、リンゴのうどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、黒星病(*Venturia inaequalis*)、斑点落葉病(*Alternaria mali*)、赤星病(*Gymnosporangium yamadae*)、モニリア病(*Sclerotinia mali*)、腐らん病(*Valsa mali*)、ナシの黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、黒星病(*Venturia nashicola*)、赤星病(*Gymnosporangium haraeanaum*)、モモの灰星病(*Sclerotinia cinerea*)、黒星病(*Cladosporium carpophilum*)、フオモブシス腐敗病(*Phomopsis* sp.)、カキの炭そ病(*Gloeosporium kaki*)、落葉病(*Cercospora kaki*; *Mycosphaerella nawae*)、ウリ類のうどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、炭そ病(*Colletotrichum lagenarium*)、つる枯病(*Mycosphaerella melonis*)、トマトの輪紋病(*Alternaria*

solani)、葉かび病(*Cladosporium fulvum*)、ナスのうどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、アブラナ科野菜の黒斑病(*Alternaria japonica*)、白斑病(*Cercospora brassicae*)、ネギのさび病(*Puccinia allii*)、ダイズの紫斑病(*Cercospora kikuchii*)、黒とう病(*Elsinoe glycines*)、黒点病(*Diaporthe phaseolorum*)、インゲンの炭そ病(*Colletotrichum lindemuthianum*)、ラッカセイの黒渋病(*Mycosphaerella personatum*)、褐斑病(*Cercospora arachidicola*)、エンドウのうどんこ病(*Erysiphe pisi*)、ジャガイモの夏疫病(*Alternaria solani*)、チャの網もち病(*Exobasidium reticulatum*)、白星病(*Elsinoe leucospila*)、タバコの赤星病(*Alternaria longipes*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、炭そ病(*Colletotrichum tabacum*)、テンサイの褐斑病(*Cercospora beticola*)、バラの黒星病(*Diplocarpon rosae*)、うどんこ病(*Sphaerotheca pannosa*)、キクの褐斑病(*Septoria chrysanthemi-indici*)、白さび病(*Puccinia horiana*)、イチゴうどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ等の灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)等に対し優れた防除効果を示す。

【0027】本発明の一般式(1)で表される化合物を農園芸用殺菌剤として使用する場合は、処理する植物に対して原体をそのまま使用してもよいが、一般には不活性な液体担体または固体担体と混合し、通常用いられる製剤形態である粉剤、水和剤、フロワブル剤、乳剤、粒剤およびその他の一般に慣用される形態の製剤として使用される。更に製剤上必要ならば補助剤を添加することもできる。

【0028】ここでいう担体とは、処理すべき部位への有効成分の到達を助け、また有効成分化合物の貯蔵、輸送、取扱いを容易にするために配合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。担体としては、通常農園芸用薬剤に使用されるものであるならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。

【0029】例えば、固体担体としては、モンモリロナイト、カオリナイト等の粘土類；珪藻土、白土、タルク、バーミュキュライト、石膏、炭酸カルシウム、シリ

カゲル、硫安等の無機物質；大豆粉、鋸屑、小麦粉等の植物性有機物質および尿素等が挙げられる。

【0030】液体担体としては、トルエン、キシレン、クメン等の芳香族炭化水素類；ケロシン、鉱油などのパラフィン系炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類；ジオキサン、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類；メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなどの非プロトン性溶媒および水等が挙げられる。

【0031】更に本発明の農園芸用殺菌剤には本発明化合物の効力を増強するために、製剤の剤型、適用場面等を考慮して目的に応じてそれぞれ単独に、または組み合わせて次の様な補助剤を添加することができる。補助剤としては、通常農園芸用薬剤に使用される界面活性剤、結合剤（例えば、リグニンスルホン酸、アルギン酸、ポリビニルアルコール、アラビアゴム、CMCナトリウム等）、安定剤（例えば、酸化防止用としてフェノール系化合物、チオール系化合物または高級脂肪酸エステル等、pH調整剤として燐酸塩、光安定剤）等を必要に応じて単独または組み合わせて使用できる。更に場合によっては防菌防黴のために工業用殺菌剤、防菌防黴剤などを添加することもできる。

【0032】補助剤について更に詳しく述べる。補助剤としては乳化、分散、拡張、湿潤、結合、安定化等の目的ではリグニンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキル硫酸塩、ポリオキシアルキレンアルキルリン酸エステル塩等のアニオン性界面活性剤；ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルチオエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシプロピレンポリオキシエチレンブロックポリマー等の非イオン性界面活性剤；ステアリン酸カルシウム、ワックス等の滑剤；イソプロピルヒドロジェンホスフェート等の安定剤、その他メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カゼイン、アラビアゴム等が挙げられる。しかし、これらの成分は以上のものに限定されるものではない。

【0033】本発明に係わる農園芸用殺菌剤における一般式(1)で表される化合物の含有量は、製剤形態によっても異なるが、通常粉剤では0.05～20重量%、水和剤では0.1～80重量%、粒剤では0.1～20重量%、乳剤では1～50重量%、フロワブル製剤では1～50重量%、ドライフロワブル製剤では1～80重量%であり、好ましくは、粉剤では0.5～5重量%、

水和剤では5～80重量%、粒剤では0.5～8重量%、乳剤では5～20重量%、フロワブル製剤では5～50重量%およびドライフロワブル製剤では5～50重量%である。補助剤の含有量は0～80重量%であり、担体の含有量は100重量%から有効成分化合物および補助剤の含有量を差し引いた量である。

【0034】本発明組成物の施用方法としては種子消毒、茎葉散布等が挙げられるが、通常当業者が利用するなどの様な施用方法にても十分な効力を発揮する。施用量および施用濃度は対象作物、対象病害、病害の発生程度、化合物の剤型、施用方法および各種環境条件等によって変動するが、散布する場合には有効成分量としてヘクタール当たり50～1,000gが適当であり、望ましくはヘクタール当たり100～500gである。また水和剤、フロワブル剤または乳剤を水で希釈して散布する場合、その希釈倍率は200～20,000倍が適当であり、望ましくは1,000～5,000倍である。

【0035】本発明の農園芸用殺菌剤は他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤および植物成長調節剤等の農薬、土壌改良剤または肥効物質との混合使用は勿論のこと、これらとの混合製剤も可能である。殺菌剤としては例えば、トリアジメホン、ヘキサコナゾール、プロクロラズ、トリフルミゾール等のアゾール系殺菌剤；メタラキシル、オキサディキシル等のアシルアラニン系殺菌剤；チオファネートメチル、ベノミル等のベンズイミダゾール系殺菌剤；マンゼブ等のジチオカーバメート系殺菌剤およびテトラクロロイソフタロニトリル、硫黄等が挙げられ、殺虫剤としては例えば、フェニトロチオン、ダイアジノン、ピリダフェンチオン、クロルピリホス、マラソン、フェントエート、ジメトエート、メチルチオメトン、プロチオホス、DDVP、アセフェート、サリチオン、EPN等のリン系殺虫剤；NAC、MTMC、BPMC、ビリミカーブ、カルボスルファン、メソミル等のカーバメート系殺虫剤およびエトフェンブロックス、ベルメトリン、フェンバレーレート等のピレスロイド系殺虫剤等が挙げられるが、これに限定されるものではない。

【0036】

【実施例】次に実施例を挙げて本発明の化合物を更に具体的に説明する。

実施例1 N-〔2-〔1,3-ジメチルブチル〕フェニル〕-2,4-ジメチルチアゾール-5-カルボン酸アミドの合成（化合物No.2）

a) 2-〔1-ヒドロキシ-1,3-ジメチルブチル〕アニリン

イソブチルマグネシウムブロミド（2Mのエーテル溶液、44.4mmol）をエーテル/THF（1：1）の混合溶媒30mlに溶かし、2-アミノアセトフェノン2.0g（14.8mmol）のTHF10ml溶液を内温を15℃以下に保ちながら滴下した。15℃で1時間攪拌後、反応液を飽和塩化アンモニウム水溶液に排

出し、酢酸エチルで抽出、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去し、目的物を2.9gの黄色オイルとして得た(収率:定量的)。

【0037】b) 2-(4-メチル-1-ペンテン-2-イル)アニリン、2-(1,3-ジメチル-1-ブチル)アニリン混合物

2-(1-ヒドロキシ-1,3-ジメチルブチル)アニリン0.55g(2.85mmol)をトルエン20mlに溶解し、p-トルエンスルホン酸・1水和物0.05gを加え、ディーン・シュタルク管で還流下に3時間かけて共沸脱水した。反応液に酢酸エチルを加え、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物の1:1混合物を0.43gの黄色オイルとして得た(収率:86%)。

【0038】c) 2-(1,3-ジメチルブチル)アニリン

上記b)の混合物0.43g(2.5mmol)をメタノール10mlに溶解し、5%Pd/C(50%wet品)0.2gをくわえて、水素雰囲気下、室温で7時間攪拌した。触媒を濾過後、溶媒を減圧留去して酢酸エチルを加えた。有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、目的物を0.40gの褐色オイルとして得た(収率:91%)。

【0039】d) N-{2-(1,3-ジメチルブチル)フェニル}-2,4-ジメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド

c)の置換アニリン0.43g(2.45mmol)をピリジン2mlに溶解し、室温で攪拌下に、2,4-ジメチルチアゾール-5-カルボン酸クロリド0.47g(2.7mmol)を滴下した。1時間攪拌後、反応液を5%塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出溶媒:n-ヘキサン/酢酸エチル=1:1)で精製し、ヘキサンから結晶化させ、目的物を0.58gの無色結晶として得た(収率:75%)。融点:130.5℃(dec.)

【0040】実施例2 N-{2-(1,3-ジメチルブチル)フェニル}-1,3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸アミドの合成(化合物No.6)

実施例1のc)の2-(1,3-ジメチルブチル)アニリン0.5g、ピリジン0.5gをテトラヒドロフラン10mlに溶解した溶液に攪拌下、1,3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸クロリド0.50gをテトラヒドロフラン5mlに溶解した溶液を滴下した。室温で1時間攪拌後、反応液を5%塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物を0.6gの無色結晶として得た(収率:77%)。

融点:153.1~154.6℃

【0041】実施例3 N-{2-(1,3-ジメチルブチル)フェニル}-5-クロロ-1,3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸アミドの合成(化合物No.7)

実施例1のc)の2-(1,3-ジメチルブチル)アニリン0.5g、ピリジン0.3gをテトラヒドロフラン10mlに溶解した溶液に攪拌下、5-クロロ-1,3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸クロリド0.50gをテトラヒドロフラン5mlに溶解した溶液を滴下した。室温で1時間攪拌後、反応液を5%塩酸に排出し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和炭酸ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物を0.9gの結晶として得た(収率:96%)。

融点:110.1~110.6℃

【0042】実施例4 N-{2-(1,3-ジメチルブチル)フェニル}-2,5-ジメチルフラン-4-カルボン酸アミドの合成(化合物No.10)

実施例1のc)の2-(1,3-ジメチルブチル)アニリン0.5g、ピリジン0.3gを塩化メチレン5mlに溶解した溶液に攪拌下、15%トリメチルアルミニウムのトルエン溶液2mlを滴下し、更に、2,5-ジメチルフラン-4-カルボン酸エチルエステル0.5gを滴下した。室温で12時間攪拌後、5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物を0.4gの結晶として得た(収率:51%)。

融点:115.9~119.2℃

【0043】実施例5 N-{2-(1,3-ジメチルブチル)フェニル}-2-メチル-1,4-オキサチン-3-カルボン酸アミド(化合物No.21)

実施例1のc)の2-(1,3-ジメチルブチル)アニリン0.5g、ピリジン0.3gを塩化メチレン5mlに溶解した溶液に攪拌下、15%トリメチルアルミニウムのトルエン溶液2mlを滴下し、更に、2-メチル-1,4-オキサチン-3-カルボン酸エチルエステル0.5gを滴下した。室温で12時間攪拌後、5%塩酸、飽和炭酸ナトリウム、飽和食塩水で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒を減圧留去後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的物を0.4gのオイルとして得た(収率:42%)。

その他実施例と同様の方法で合成した一般式(1)(化

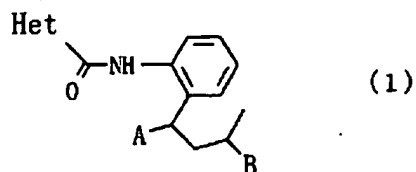
10) の化合物の例を以下の第1表～第10表(表1～表10)にまとめた。

【0045】

【表1】

【0044】

【化10】



第1表. 2-アルキルアニリド誘導体(1)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (℃)	¹ H-NMR(270MHz) (CDCl ₃ , δ値、J:Hz)
1	Me / Me	H1 (R ¹ =Me, R ² =H)	オイル	0.85(3H, d, J=5.9), 0.86(3H, d, J=6.6), 1.24(3H, d, J=6.6), 1.40~1.57(3H, m), 2.81(3H, s), 2.98(1H, sext, J=6.6), 7.22~7.35(3H, m), 7.37(1H, brs), 7.68(1H, m), 8.76(1H, s)

【0046】

【表2】

第2表. 2-アルキルアニリド誘導体(2)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (℃)	¹ H-NMR(270MHz) (CDCl ₃ , δ値、J:Hz)
4	Me / Me	H1 (R ¹ =CF ₃ , R ² =H)		
6	Me / Me	H2 (R ¹ =Me, R ² =H)	153.1 ~ 154.6	0.85(6H, d, J=6.6), 1.23(3H, d, J=7.3), 1.41~1.57(3H, m), 3.03(1H, m), 3.92(1H, s), 7.20~7.30(3H, m), 7.72~7.79(2H, m), 8.03(1H, brs)

【0047】

【表3】

第3表. 2-アルキルアニリド誘導体(3)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
7	Me / Me	H 2 (R ¹ =Me, R ² =Cl)	110.1 ~ 110.6	0.85(6H, d, J=5.9), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.41~1.54(3H, m), 2.52(3H, s), 3.04(1H, m), 3.86(1H, s), 7.19~7.23(4H, m), 7.74~7.80(2H, m)
8	Me / Me	H 2 (R ¹ =CF ₃ , R ² =Cl)	100 ~ 104.5	0.84(6H, d, J=5.9), 1.20(3H, d, J=6.6), 1.40~1.56(3H, m), 2.99(1H, m), 3.97(3H, s), 7.19~7.30(3H, m), 7.51(1H, brs), 7.72(1H, brs)
9	Me / Me	H 3 (R ² =H)	108 ~ 110	0.85(6H, m), 1.23(3H, d, J=7.3), 1.38~1.53(3H, m), 2.64(3H, s), 2.94~3.02(1H, m), 6.50(1H, s), 7.18~7.32(5H, m), 7.72(1H, d, J=8.8)

【0048】

【表4】

第4表. 2-アルキルアニリド誘導体(4)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
10	Me / Me	H 3 (R ² =5-Me)	115.9 ~ 119.2	0.86(6H, d, J=5.9), 1.23(3H, d, J=6.6), 1.40~1.55(3H, m), 2.17(3H, s), 2.59(3H, s), 6.60(1H, brs), 7.17~7.27(3H, m), 7.75(1H, m)
11	Me / Me	H 3 (R ² =4-Me)	90 ~ 92	0.85(6H, d, J=6.6), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.41~1.59(3H, m), 2.23(3H, s), 2.24(3H, s), 2.95(1H, sext, J=6.6), 7.11(1H, s), 7.17~7.30(3H, m), 7.74(1H, d, J=8.8)
12	Me / Me	H 4 (R ² =H)	66 ~ 68	0.86(6H, d, J=5.2), 1.23(3H, d, J=7.3), 1.45~1.56(3H, m), 2.60(3H, s), 2.99(1H, m), 6.95(1H, d, J=4.4), 7.20~7.34(4H, m), 7.43(brs), 7.78(1H, d, J=8.8)

【0049】

【表5】

第5表. 2-アルキルアニリド誘導体(5)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (℃)	¹ H-NMR(270MHz) (CDCl ₃ , δ値、J:Hz)
13	Me / Me	H4 (R ² =5-Me)		
14	Me / Me	H4 (R ² =4-Me)		
15	Me / Me	H5 (R ¹ =Me, R ² =Me)	不溶	0.91(6H, t, J=6.6), 1.27(3H, d, J=7.3), 1.41~1.67(3H, m), 2.52(6H, s), 3.00(1H, m), 7.18~7.30(4H, m), 7.78(1H, brs), 7.86(1H, dd, J=7.3, 2.2)
16	Me / Me	H5 (R ¹ =Me, R ² =H)	69.5 ~ 72.0	0.87(3H, d, J=6.6), 0.89(3H, d, J=5.9), 1.26(3H, d, J=6.6), 1.42~1.59(3H, m), 2.59(3H, s), 2.99(1H, m), 7.17~7.30(3H, m), 7.84(1H, brs), 7.85(1H, s), 7.86(1H, t, J=2.9)

【0050】

【表6】

第6表. 2-アルキルアニリド誘導体(6)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
17	Me / Me	H5 (R ¹ =CF ₃ , R ² =Me)		
18	Me / Me	H6 (R ⁴ =Cl)	オイル	0.83(6H, d, J=5.9), 1.23(3H, d, J=6.6), 1.41~1.59(3H, m), 3.03~3.11(1H, m), 7.25~7.43(4H, m), 7.78(1H, m), 8.09(1H, brs), 8.28(1H, dd, J=2.2, 4.4), 8.53(1H, dd, J=2.2, 4.4)
19	Me / Me	H6 (R ⁴ =SMe)	98.2 ~ 98.7	0.84(3H, d, J=5.9), 0.85(3H, d, J=5.9), 1.23(3H, d, J=6.6), 1.40~1.58(3H, m), 2.64(3H, s), 3.09(1H, m), 7.11~7.15(1H, m), 7.22~7.32(5H, m), 7.99(1H, brs), 8.56(1H, dd, J=4.4, 1.5)

【0051】

【表7】

第7表. 2-アルキルアニリド誘導体(7)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
20	Me / Me	H7	オイル	0.86~0.91(6H, m), 1.27(3H, d, J=6.6), 1.40~1.63(2H, m), 3.06~3.08(1H, m), 3.41~3.43(1H, m), 7.20~7.31(3H, m), 8.11(1H, d, J=8.3), 8.54(1H, d, J=2.9), 8.61(1H, d, J=2.9), 9.70(1H, brs)
21	Me / Me	H8 (X=S)	オイル	0.87(3H, d, J=5.1), 0.89(3H, d, J=5.9), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.40~1.53(3H, m), 2.28(3H, s), 2.97(1H, m), 2.99~3.03(2H, m), 4.42(2H, dt, J=4.4, 2.9), 7.15~7.26(3H, m), 7.75(1H, dd, J=7.0, 2.2), 7.88(1H, brs)

【0052】

【表8】

第8表. 2-アルキルアニリド誘導体(8)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
22	Me / Me	H 8 (X=CH ₃)	94.7 ~ 96.8	0.87(6H, d, J=6.6), 1.22(3H, d, J=6.6), 1.37~1.59(3H, m), 1.91~1.99(2H, m), 2.19(3H, s), 2.38(2H, t, J=6.6), 2.93(1H, m), 4.05(2H, t, J=5.1), 7.03(1H, brs), 7.15~7.26(3H, m), 7.69(1H, m)
25	Me / Me	H 6 (R ⁴ =CF ₃)		

【0053】

【表9】

第9表. 2-アルキルアニリド誘導体(9)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (°C)	¹ H-NMR (270MHz) (CDCl ₃ , δ 値、J : Hz)
26	Me / Et	H 2 (R ¹ =Me, R ² =H)	96 ~ 98	0.77~0.86(6H, m), 0.97~1.43(6H, m), 1.18(2H, d, J=6.6), 3.01(1H, sept, J=6.6), 3.99(3H, s), 7.20~7.33(3H, m), 7.58(1H, brs), 7.64~7.70(1H, m), 8.04(1H, s)
27	H / Et	H 2 (R ¹ =Me, R ² =Br)	128 ~ 129	0.92(6H, d, J=6.6), 1.42~1.48(2H, m), 1.55~1.64(1H, m), 2.56~2.62(2H, m), 3.99(3H, s), 7.16~7.27(3H, m), 7.60(1H, brs), 7.83(1H, d, J=8.1), 8.04(1H, s)
28	Me / Me	H 6 (R ⁴ =Me)	166 ~ 167	0.85(3H, t, J=7.3), 0.90(3H, d, J=7.3), 1.12~1.25(1H, m), 1.32~1.43(3H, m), 1.55~1.64(1H, m), 2.53~2.63(2H, m), 3.98(3H, s), 7.13~7.26(3H, m), 7.60(1H, brs), 7.82(1H, d, J=7.3), 8.03(1H, s)

【0054】

【表10】

第10表. 2-アルキルアニリド誘導体(10)

化合物 No	A/B	Het (置換基)	mp (℃)	¹ H-NMR(270MHz) (CDCl ₃ , δ値、J:Hz)
29	Me / Me	H1 (R ₁ =Et, R ₂ =Me)	オイル	
30	Me / Me	H1 (R ₁ =Et, R ₂ =H)	70 ~ 74	
31	Me / Me	H2 (R ₁ =Et, R ₂ =H)	オイル	
32	Me / Me	H9	オイル	

次に本発明に関わる農園芸用殺菌剤の製剤例および試験例を示す。

【0055】製剤例 1 (粉剤)

化合物番号1の化合物2部およびクレー98部を均一に混合粉砕し、有効成分2%を含有する粉剤を得た。

【0056】製剤例 2 (水和剤)

化合物番号1の化合物10部、カオリン70部、ホワイトカーボン18部およびアルキルベンゼンスルホン酸カルシウム2部を均一に混合粉砕して均一組成の微粉末状の、有効成分10%を含有した水和剤を得た。

【0057】製剤例 3 (水和剤)

化合物番号1の化合物20部、アルキルベンゼンスルホン酸カルシウム3部、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル5部および白土72部を均一に混合粉砕して、均一組成の微粉末状の、有効成分20%を含有した水和剤を得た。

【0058】製剤例 4 (水和剤)

化合物番号6の化合物50部、リグニンスルホン酸ナトリウム1部、ホワイトカーボン5部および珪藻土44部を混合粉砕して、有効成分50%を含有する水和剤を得た。

【0059】製剤例 5 (フロワブル剤)

化合物番号6の化合物5部、プロピレングリコール7部、リグニンスルホン酸ナトリウム4部、ジオクチルスルホサキシネートナトリウム塩2部、および水82部をサンドグラインダーで湿式粉砕し有効成分5%を含有するフロワブル剤を得た。

【0060】製剤例 6 (フロワブル剤)

化合物番号9の化合物10部、プロピレングリコール7

部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部、ジオクチルスルホサキシネートナトリウム塩2部、および水79部をサンドグラインダーで湿式粉砕し、有効成分10%を含有するフロワブル剤を得た。

【0061】製剤例 7 (フロワブル剤)

化合物番号1の化合物25部、プロピレングリコール5部、ポリオキシエチレンオレイン酸エステル5部、ポリオキシエチレンジアリルエーテルスルフェート5部、シリコン系消泡剤0.2部、および水59.8部をサンドグラインダーで湿式粉砕し、有効成分25%のフロワブル剤を得た。

【0062】試験例1 イネいもち病防除試験

温室内で直径7cmの(底に穴があいていない)プラスチックカップに2葉期まで30~40本ずつ生育させたイネ(品種:マンゲツモチ)に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度(有効成分濃度200ppm)に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後、オートミール培地上で培養したイネいもち病菌から調製した分生孢子懸濁液(4×10⁵個/ml)をイネ全体に噴霧接種し、温度25℃、湿度95%以上の人工気象室に7日間保った。接種7日後、イネ5本当たりのイネいもち病の病斑数を次の指標に従って調査した。結果を第11表(表11)~第14表(表14)に示す。

- 発病度
- 0 : 発病なし
 - 1 : 病斑数 1 ~ 2 個
 - 2 : 病斑数 3 ~ 5 個
 - 3 : 病斑数 6 ~ 10 個
 - 4 : 病斑数 11 個以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。

防除価 (%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0063】第14表中、対照化合物1~7は以下のとおり。

対照化合物1：特許記載化合物、化学名=N-(2-プロピルフェニル)-2-クロロニコチン酸アミド（特開平5-221994号公報）

対照化合物2：特許記載化合物、化学名=N-(2-イソプロピルフェニル)-4-トリフルオロメチル-2-メチルチアゾール-5-カルボン酸アミド（特開平5-221994号公報）

対照化合物3：特許記載化合物、化学名=N-(2-sec-ブチルフェニル)-1,3-ジメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド（特開平6-199803号公報）

対照化合物4：トリシクラゾール、商品名=ビーム、化学名=5-メチル-1,2,4-トリアゾロ[3,4-b]ベンゾチアゾール

対照化合物5：プロシモン、商品名=スミレックス、化学名=N-(3,5-ジクロロフェニル)-1,2-ジメチルシクロプロパン-1,2-ジカルボキシミド

対照化合物6：トリアジメホン、商品名=バイレトン、化学名=1-(4-クロロフェノキシ)-3,3-ジメチル-1-(1,2,4-トリアゾール-1-イル)-2-ブタノン

対照化合物7：フルトラニル、商品名=モンカット、化学名=α,α,α-トリフルオロ-3'-イソプロポキシ-オ-トルアニリド

【0064】試験例2 インゲン灰色かび病防除試験 (1)

温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに子葉の展開まで2本ずつ生育させたインゲン（品種：つるなしトッパクロップ）に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度（有効成分濃度200ppm）に希釈して、4ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌（MBC耐性、RS菌）から調製した分生孢子懸濁液（1×10⁶個/ml）を子葉上に噴霧接種し、温度20~23℃、湿度95%以上の温室に7日間保った。接種7日後、インゲン1葉当たり灰色かび病の病斑が占める面積を調査した。結果を第11表（表11）~第14表（表14）に示す。尚、発病度の判定及び防除価の算出方法は試験例1と同様に行った。

【0065】試験例3 インゲン灰色かび病防除試験

(2)

温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに子葉の展開まで2本ずつ生育させたインゲン（品種：つるなしトッパクロップ）に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度（有効成分濃度200ppm）に希釈して、4ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌（MBC耐性・ジカルボキシミド系薬剤耐性、RR菌）から調製した分生孢子懸濁液（1×10⁶個/ml）を子葉上に噴霧接種し、温度20~23℃、湿度95%以上の温室に7日間保った。接種7日後、インゲン1葉当たり灰色かび病の病斑が占める面積を調査した。結果を第11表（表11）~第14表（表14）に示す。尚、発病度の判定及び防除価の算出方法は試験例1と同様に行った。

【0066】試験例4 キュウリうどんこ病防除試験
温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに1.5葉期まで2本ずつ生育させたキュウリ（品種：相模半白）に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度（有効成分濃度200ppm）に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後、少量の展着剤を加えた水にキュウリうどんこ病分生孢子を懸濁して調製した分生孢子懸濁液（5×10⁵個/ml）を噴霧接種し温室内に7日間保った。接種7日後、キュウリ1葉当たりうどんこ病の病斑が占める面積を調査した。結果を第11表（表11）~第14表（表14）に示す。尚、発病度の判定及び防除価の算出方法は試験例1と同様に行った。

【0067】試験例5 コムギ赤さび病防除試験
温室内で直径6cmのプラスチックポットに1.5葉期まで15~20本ずつ生育させたコムギ（品種：農林61号）に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度（有効成分濃度100ppm）に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後、コムギ赤さび病の夏孢子を散布し加温状態に2日間置いた後、温度18℃の部屋に移した。接種10日後、コムギ1葉目に赤さび病の病斑が占める面積を調査した。結果を第11表（表11）~第14表（表14）に示す。尚、発病度の判定及び防除価の算出方法は試験例1と同様に行った。

【0068】試験例6 イネ紋枯れ病防除試験
温室内で1/10,000aのカラーポットに2本/1箇所植えて5株/ポットを分けつ期まで生育させたイネ（品種：ツキミモチ）に、本発明化合物及び対照化合物を製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度（有効成分濃度200ppm）に希釈して、3ポット当たり100mlずつ散布した。薬液が乾いた後、PDA培地上で培養したイネ紋枯れ病菌をコルクボーラーで打ち抜いた菌体を株間にポット当たり5箇所接種した。温度25℃、湿度95%以上の人工気象室に移動し、発病を促し

た。無処理区の発病を確認し、病斑長を測定し、調査し (表14) に示す。
 た。。発病度の判定及び防除価の算出方法は試験例1と 【0069】
 同様に行った。結果を第11表(表11)～第14表 【表11】

第11表

化合物 番号	試験例 1	試験例 2	試験例 3	試験例 4	試験例 5	試験例 6
1	100	100	100	100	100	100
6	---	100	100	100	100	100
7	100	100	100	100	100	100
8	---	100	100	100	100	100
9	100	100	100	100	100	100

表中の数値は防除価を表す。また---は未供試を表す。

【0070】

【表12】

第12表

化合物 番号	試験例 1	試験例 2	試験例 3	試験例 4	試験例 5	試験例 6
10	100	100	100	---	100	100
11	100	100	100	---	100	100
12	100	100	100	100	100	100
15	---	---	---	---	100	---
18	100	---	---	100	100	100
19	---	100	100	100	100	100
20	---	100	100	---	---	100
21	100	100	100	---	100	100
22	100	100	100	100	100	100

表中の数値は防除価を表す。また---は未供試を表す。

【0071】

【表13】

第13表

化合物 番号	試験例 1	試験例 2	試験例 3	試験例 4	試験例 5	試験例 6
26	100	---	---	100	100	100
27	100	---	---	100	100	100
28	100	100	100	100	100	100
29	100	100	100	100	100	100
30	80	80	80	100	100	100
31	80	90	80	100	100	100
32	90	100	100	100	100	100

表中の数値は防除価を表す。また---は未供試を表す。

【0072】

【表14】

第14表

化合物 番号	試験例 1	試験例 2	試験例 3	試験例 4	試験例 5	試験例 6
対照1	0	0	0	0	0	0
対照2	0	0	0	0	0	0
対照3	80	60	50	0	100	100
対照4	100	---	---	---	---	---
対照5	---	100	0	---	---	---
対照6	---	---	---	100	90	60
対照7	0	0	0	0	100	100

表中の数値は防除価を表す。また---は未供試を表す。

対照：対照化合物の番号を示す。

【0073】

【発明の効果】本発明により、従来技術と比較して低薬量でも優れた防除効果を示し、薬剤耐性菌に対しても効果があり、一つの薬剤で多種類の病害を防除できる、更

に作物に対しても安全な置換カルボン酸アニリド誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤、該誘導体を使用して植物病害を防除する方法が提供される。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.⁶

識別記号

F I

C 0 7 D 231/16

C 0 7 D 231/16

263/34

263/34

307/68

307/68

309/28

309/28

327/06

327/06

333/24

333/24

277/30

241/14

(72)発明者 高橋 完

(72)発明者 柳瀬 勇次

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内

(72)発明者 稲見 俊一

(72)発明者 川島 秀雄

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2001-302605
(P2001-302605A)

(43)公開日 平成13年10月31日(2001. 10. 31)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト*(参考)
C 0 7 C 233/64		C 0 7 C 233/64	4 C 0 2 3
A 0 1 N 37/22	1 0 1	A 0 1 N 37/22	1 0 1 4 C 0 3 3
43/08		43/08	D 4 C 0 3 7
43/10		43/10	D 4 C 0 5 5
43/16		43/16	A 4 C 0 5 6
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 32 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願2000-119399(P2000-119399)

(22)出願日 平成12年4月20日(2000. 4. 20)

(71)出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72)発明者 阪口 裕史

兵庫県宝塚市高司4丁目2番1号 住友化学工業株式会社内

(74)代理人 100093285

弁理士 久保山 隆 (外2名)

最終頁に続く

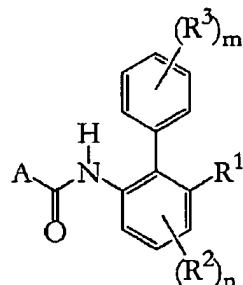
(54)【発明の名称】 ビフェニル化合物およびその用途

(57)【要約】

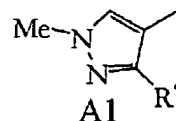
【課題】優れた植物病害防除効力を有する化合物を提供すること。

【解決手段】一般式 化1

【化1】



〔式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基等を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基等を表わし、Aは以下のA1等

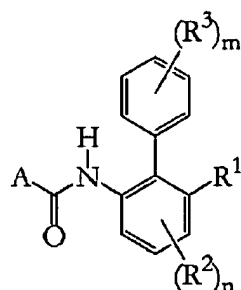


で示される基(ここで、R⁴はハロゲン原子等を表わす。)を表わす。〕で示されるビフェニル化合物。

【特許請求の範囲】

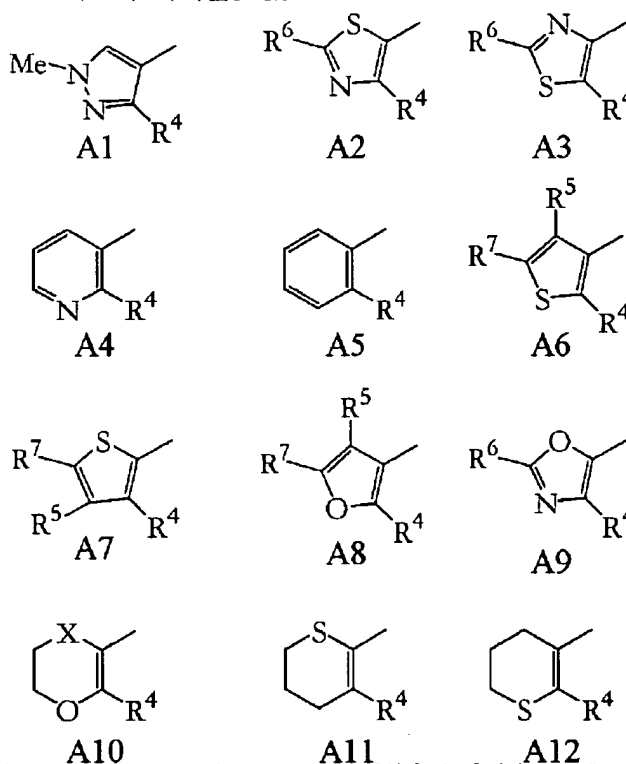
【請求項1】一般式 化1

【化1】



〔式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基または

塩素原子を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシアルキル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C2～C6アルコキシカルボニル基、C3～C30トリアルキルシリル基を表わすか、あるいはmが2～5の整数である場合に隣りあう2つのR³でC3～C5アルキレン基、C3～C5ハロアルキレン基、C2～C4アルキレンオキシ基、C2～C4ハロアルキレンオキシ基、C1～C3アルキレンジオキシ基またはC1～C3ハロアルキレンジオキシ基を表わしてもよい。Aは以下のA1からA12



で示されるいずれかの基〔ここで、R⁴はハロゲン原子、C1～C4アルキル基、C1～C4ハロアルキル基またはシアノ基を表わし、R⁵は水素原子、C1～C4アルキル基またはC1～C4ハロアルキル基を表わし、R⁶は水素原子、ハロゲン原子、C1～C4アルキル基、C1～C4ハロアルキル基、アミノ基またはシアノ基を表わし、R⁷は水素原子、C1～C4アルキル基またはC1～C4ハロアルキル基を表わし、Xは硫黄原子、SO基、SO₂基またはCH₂基を表わす。〕で示されるビフェニル化合物。

【請求項2】上記一般式 化1において、nが0である請求項1に記載のビフェニル化合物。

【請求項3】上記一般式 化1において、AがA1、A2またはA4で示されるいずれかの基である請求項1または2に記載のビフェニル化合物。

【請求項4】上記一般式 化1において、AがA1またはA2で示されるいずれかの基である請求項1または2に記載のビフェニル化合物。

【請求項5】上記一般式 化1において、R³が同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキ

ル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基またはC1～C10ハロアルキルチオ基である請求項1～4のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項6】上記一般式 化1において、R¹がC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項7】上記一般式 化1において、R¹がC1～C10アルキル基、C1～C10アルコキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項8】上記一般式 化1において、R¹がメチル基、メトキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項9】請求項1～8のいずれかに記載のビフェニル化合物を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はビフェニル化合物及びその用途に関する。

【0002】

【従来の技術】国際特許出願公開明細書WO97/08148号にはある種のビフェニル化合物が有害菌類防除に有効であることが記載されているが、該化合物は植物病害防除効力の点で必ずしも十分であるとは言い難い。

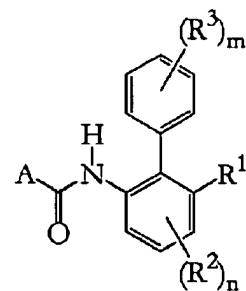
【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、優れた植物病害防除効力を有する化合物を提供することを課題とする。

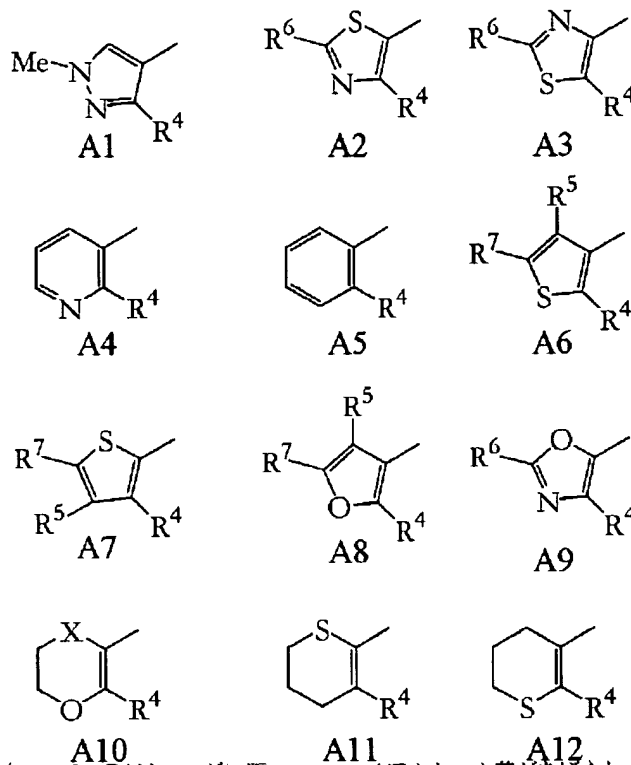
【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、鋭意検討した結果、後記一般式 化2で示されるビフェニル化合物が優れた植物病害防除効力を有することを見出し、本発明に至った。即ち、本発明は、一般式 化2

【化2】



〔式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基または塩素原子を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシアルキル基C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C2～C6アルコキシカルボニル基、C3～C30トリアルキルシリル基を表わすか、あるいはmが2～5の整数である場合に隣りあう2つのR³でC3～C5アルキレン基、C3～C5ハロアルキレン基、C2～C4アルキレンオキシ基、C2～C4ハロアルキレンオキシ基、C1～C3アルキレンジオキシ基またはC1～C3ハロアルキレンジオキシ基を表わしてもよい。Aは以下のA1からA12



で示されるいずれかの基（ここで、 R^4 はハロゲン原子、 $C1\sim C4$ アルキル基、 $C1\sim C4$ ハロアルキル基またはシアノ基を表わし、 R^5 は水素原子、 $C1\sim C4$ アルキル基または $C1\sim C4$ ハロアルキル基を表わし、 R^6 は水素原子、ハロゲン原子、 $C1\sim C4$ アルキル基、 $C1\sim C4$ ハロアルキル基、アミノ基またはシアノ基を表わし、 R^7 は水素原子、 $C1\sim C4$ アルキル基または $C1\sim C4$ ハロアルキル基を表わし、 X は硫黄原子、 SO 基、 SO_2 基または CH_2 基を表わす。）を表わす。]で示されるビフェニル化合物（以下、本発明化合物と記す。）及びそれを有効成分として含有する農園芸用殺菌剤を提供する。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明において、 R^1 で示される $C1\sim C10$ アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基、1,1-ジメチルエチル基等があげられ、 R^1 で示される $C1\sim C10$ ハロアルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、クロルジフルオロメチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、1,1,2,2-テトラフルオロエチル基等のフッ素原子の置換した $C1\sim C4$ アルキル基等があげられ、 R^1 で示される $C2\sim C10$ アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-メチル-2-プロペニル基等があげられ、 R^1 で示される $C2\sim C10$ アルキニル基としては、例えばエチニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-プロピニル基等の $C2\sim C$

4アルキニル基があげられ、 R^1 で示される $C3\sim C10$ シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等があげられ、 R^1 で示される $C5\sim C10$ シクロアルケニル基としては、例えばシクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等があげられ、 R^1 で示される $C1\sim C10$ アルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、1-メチルプロピルオキシ基、1,1-ジメチルエトキシ基等があげられ、 R^1 で示される $C1\sim C10$ ハロアルコキシ基としては、例えばトリフルオロメトキシ基、ジフルオロメトキシ基、フルオロメトキシ基、2,2,2-トリフルオロエトキシ基等のフッ素原子の置換した $C1\sim C4$ アルコキシ基等があげられ、 R^1 で示される $C1\sim C10$ アルキルチオ基としては、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、イソブチル基、1-メチルプロピルチオ基、1,1-ジメチルエチルチオ基等があげられ、 R^3 で示される $C1\sim C10$ ハロアルキルチオ基としては、例えばトリフルオロメチルチオ基、ジフルオロメチルチオ基、フルオロメチルチオ基、2,2,2-トリフルオロエチルチオ基等のフッ素原子で置換された $C1\sim C4$ アルキルチオ基等があげられ、

【0006】 R^3 で示されるハロゲン原子は、塩素原子、臭素原子、フッ素原子または沃素原子を意味し、 R^3 で示される $C1\sim C10$ アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブ

チル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基、ペンチル基、1-メチルブチル基、1-エチルブチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2, 2-ジメチルプロピル基、1, 2-ジメチルプロピル基、1, 1-ジメチルプロピル基、ヘキシル基、1-メチルペンチル基、1-エチルペンチル基、3, 3-ジメチルブチル基、ヘプチル基、3, 7-ジメチルオクチル基、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、クロルジフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルコキシアルキル基としては、例えばメトキシメチル基、エトキシメチル基、イソプロピルオキシメチル基、メトキシプロピル基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、1, 1-ジメチルエトキシ等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルコキシ基としては、例えばトリフルオロメトキシ基、ジフルオロメトキシ基、フルオロメトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルキルチオ基としては、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、ブチルチオ基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルキルチオ基としては、例えばトリフルオロメチルチオ基、ジフルオロメチルチオ基、フルオロメチルチオ基、2, 2, 2-トリフルオロエチルチオ基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C10アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-メチル-2-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、2-ブテニル基、2-ペンテニル基、3-メチル-2-ブテニル基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C10アルキニル基としては、例えばエチニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-プロピニル基、2-ブチニル基等があげられ、 R^3 で示されるC3~C10シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等があげられ、 R^3 で示されるC5~C10シクロアルケニル基としては、例えばシクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C6アルコキシカルボニル基としては、例えばメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等があげられ、 R^3 で示されるC3~C30リアルキルシリル基としては、例えばトリメチルシリル基、トリエチルシリル基、ト-ブチルジメチルシリル基等があげられ、2つの R^3 で示されるC3~C5アルキレン基としては、例えばトリメチレン基、テトラメチレン基等があげられ、2つの R^3 で示さ

れるC3~C5アルキレン基としては、例えば2, 2-ジフルオロトリメチレン基等があげられ、2つの R^3 で示されるC2~C4アルキレンオキシ基としては、例えばエチレンオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC2~C4ハロアルキレンオキシ基としては、例えば1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチレンオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC1~C3アルキレンジオキシ基としては、例えばメチレンジオキシ基、エチレンジオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC1~C3ハロアルキレンジオキシ基としては、フルオロメチレンジオキシ基、ジフルオロメチレンジオキシ基等があげられ、 R^4 および R^6 で示されるハロゲン原子は、塩素原子、臭素原子、フッ素原子または沃素原子を意味し、

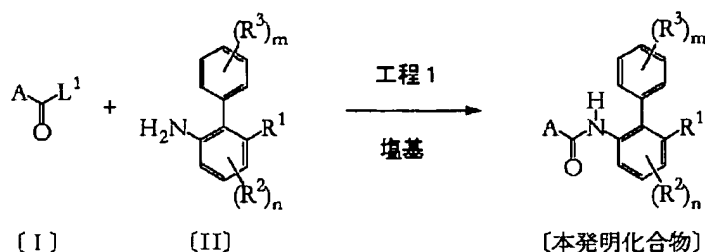
【0007】 R^4 、 R^5 、 R^6 および R^7 で示されるC1~C4アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基等があげられ、 R^4 、 R^5 、 R^6 および R^7 で示されるC1~C4ハロアルキル基としては、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基、クロルジフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基等があげられる。

【0008】本発明化合物のうち、植物病害防除効力の点でより好ましい化合物の例として、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-6)、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-6)、N-(4'-クロロ-6-メトキシ-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-60)またはN-(4'-クロロ-6-クロル-ビフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物1-89)等があげられる。

【0009】本発明化合物は例えば、下記「製造法A」または「製造法B」にしたがって製造することができる。これらの製造法においては必要に応じ官能基を反応から保護するために保護基を用いることができる。

【0010】「製造法A」一般式〔I〕で示される化合物と一般式〔II〕で示される化合物とを、塩基の存在下に反応させる本発明化合物の製造法。

【化3】



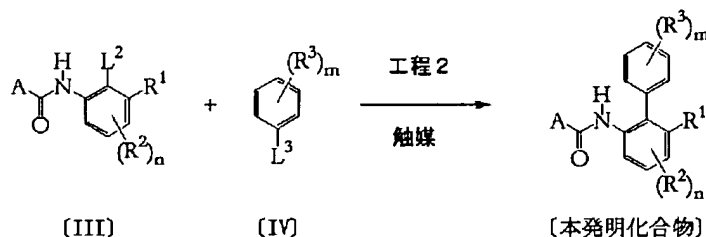
[式中、R¹、R²、R³、A、mおよびnは前記と同じ意味を表わし、L¹は塩素原子、臭素原子等の脱離基を表わす。]

スキーム 化3の工程1の反応における反応温度は通常-20～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.2～24時間の範囲である。一般式〔I〕で示される化合物に対して、一般式〔II〕で示される化合物は通常0.2～5のモル比で使用され、塩基は通常1～10のモル比で使用される。工程1で使用される塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム炭酸カルシウム、水素化ナトリウム等の無機塩基、カリウム-ターボキシド、ナトリウムメトキド、ナトリウムエトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類、ピリジン、トリエチルアミン、エチルジイソプロピルアミン、アニリン等の有機塩基、あるいはこれらの混合物があげられる。該反応は通常、溶媒中にて行われる。溶媒としては、例えば1,4-ジオキサン、テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチル

ルエーテル、ターブチルメチルエーテル等のエーテル溶媒、n-ヘキサン、n-ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒、トルエン等の芳香族炭化水素溶媒、モノクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素溶媒、ピリジン、トリエチルアミン、N、N-ジメチルアニリン等の有機塩基溶媒、酢酸ブチル、酢酸エチル等のエステル溶媒、アセトニトリル等のニトリル溶媒、N、N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、水、あるいはそれらの混合物があげられる。反応終了後の反応液は、反応液を水に注加した後、有機溶媒抽出、濃縮等の通常の後処理を行い、目的化合物を得ることができる。必要ならば再結晶、蒸留、クロマトグラフィー等により、目的化合物を精製することができる。

【0011】〔製造法B〕一般式〔III〕で示される化合物と一般式〔IV〕で示される化合物とを、触媒の存在下に反応させる本発明化合物の製造法。

【化4】



[式中、R¹、R²、R³、A、mおよびnは前記と同じ意味を表わし、L²は塩素原子、臭素原子、フッ素原子、トリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表し、L³はB(OH)₂基、B(OR⁸)₂基またはSnR⁹₃基を表わし、R⁸は同一または相異なり、各々C1～C10アルキル基を表わすか、2つのR⁸で-CH₂CH₂-基または-C(CH₃)₂C(CH₃)₂-基を表わし、R⁹は同一または相異なり、各々C1～C10アルキル基を表す。]

スキーム 化4の工程2の反応における反応温度は通常20～120℃の範囲であり、反応時間は通常1～24時間の範囲である。一般式〔III〕で示される化合物に対して、一般式〔IV〕で示される化合物は通常0.2～5のモル比で使用され、触媒は通常0.001～0.1のモル比で使用される。工程2で使用される触媒としては、例えば酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルフォスフィン)パラジウム(0)、

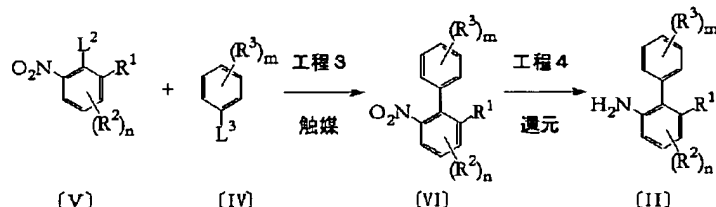
{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体、ビス-(トリフェニルフォスフィン)パラジウム(II)ジクロライド等のパラジウム触媒があげられる。該反応は、更に塩基(例えば、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、炭酸カリウム、磷酸三カリウム、重曹等の無機塩基)や相関移動触媒(例えば、テトラブチルアンモニウムブロマイド、ベンジルトリエチルアンモニウムブロマイド等の4級アンモニウム塩)の存在下に行う場合がある。また、一般式〔IV〕で示される化合物におけるL³がSnR¹⁰₃基である場合は、更に酸化銅(II)、酸化銀(II)等の存在下に行う場合がある。該反応は通常、溶媒中にて行われる。溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、イソプロパノール等のアルコール溶媒、1,4-ジオキサン、テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル、ターブチルメチルエーテル等のエーテル溶媒、n

ヘキサン、*n*-ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒、トルエン等の芳香族炭化水素溶媒、アセトニトリル等のニトリル溶媒、*N,N*-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、水、あるいはそれらの混合物があげられる。該反応は、より具体的には例えば、*J. Org. Chem.*, 1997, 62, 7170-7173に記載の方法、*J. Org. Chem.*, 1995, 60, 7508-7510に記載の方法または*Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, 1986, 25, 508-524に記載の方法等に準じて行なう。反応終了後の反応液は、反応液を水に注加した後、有機溶媒抽出、濃縮等の通常の後処理を行い、目的化合物を得るこ

とができる。必要ならば再結晶、蒸留、クロマトグラフィー等により、目的化合物を精製することができる。

【0012】一般式〔I〕で示される化合物は、例えば国際特許出願公開明細書WO93/11117号に記載の方法、欧州特許出願公開明細書EPA-0545099号に記載の方法または欧州特許出願公開明細書EPA-0589301号に記載の方法等の公知の方法で得ることができる。一般式〔II〕で示される化合物は例えば、下記のスキーム 化5で示される方法にしたがって製造することができる。

【化5】



〔式中、 L^2 、 L^3 、 R^1 、 R^2 、および R^3 は前記と同じ意味を表わす。〕

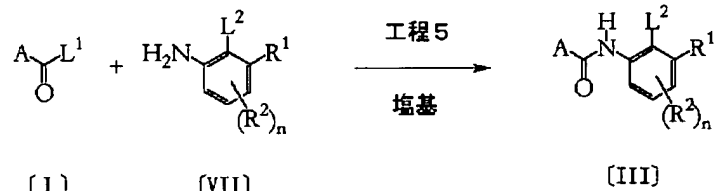
スキーム 化5の工程3の反応は、スキーム 化4の工程2と同様の方法により、一般式〔VI〕で示される化合物を得ることができる。

【0013】スキーム 化5の工程4は、例えば米国特許明細書US-5068437号に記載の方法、*J. Org. Chem.*, 1979, 44, 1233-123

6に記載の方法、第4版実験化学講座（有機合成VII）178項に記載されている方法等に準じて、一般式〔II〕で示される化合物を得ることができる。

【0014】一般式〔III〕で示される化合物は例えば、下記のスキーム 化6で示される方法にしたがって製造することができる。

【化6】



〔式中、 L^1 、 L^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A 、 m および n は前記と同じ意味を表わす。〕

スキーム 化6の工程5の反応は、スキーム 化5の工程1と同様の方法により、一般式〔III〕で示される化合物を得ることができる。

【0015】本発明化合物を農園芸用殺菌剤の有効成分として用いる場合、他の何らの成分も加えずそのまま用いてもよいが、通常は固体担体、液体担体、界面活性剤、その他の製剤用補助剤と混合して、乳剤、水和剤、顆粒水和剤、エマルジョン製剤、フロアブル製剤、粉剤、粒剤等に製剤して用いる。これらの製剤には有効成分として本発明化合物を、重量比で通常、0.1~90%含有する。かかる製剤化の際に用いられる、固体担体としては、例えばカオリンクレイ、アッタパルジャイトクレイ、ベントナイト、モンモリロナイト、酸性白土、パイロフィライト、タルク、珪藻土、方解石等の鉱物質、トウモロコシ穂軸粉、クルミ殻粉等の天然有機物、

尿素等の合成有機物、炭酸カルシウム、硫酸アンモニウム等の塩類、合成含水酸化珪素等の合成無機物等からなる微粉末あるいは粒状物等があげられ、液体担体としては、例えばキシレン、アルキルベンゼン、メチルナフタレン等の芳香族炭化水素類、イソプロパノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、セロソルブ等のアルコール類、アセトン、シクロヘキサノン、イソホロン等のケトン類、ダイズ油、綿実油等の植物油、石油系脂肪族炭化水素、エステル類、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル、水等があげられる。界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキル（アリール）スルホン酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテルリン酸エステル塩、リグニンスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物等の陰イオン界面活性剤、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルポリオキシプロピレンブロックポリマー、ソ

ルビタン脂肪酸エステル等の非イオン界面活性剤等があげられる。製剤用補助剤としては、例えばポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン等の水溶性高分子、アラビアガム、アルギン酸およびその塩、CMC（カルボキシメチルセルロース）、ゼンサンガム、等の多糖類、アルミニウムマグネシウムシリケート、アルミナゾル等の無機物、防腐剤、着色剤、PAP（酸性リン酸イソプロピル）、BHT等の安定化剤等があげられる。本発明化合物の施用方法としては、具体的には茎葉散布、土壌処理、種子消毒等があげられ、さらに、通常、当業者が利用するような施用方法にても用いることができる。

【0016】本発明化合物を農園芸用殺菌剤の有効成分として用いる場合、その有効成分の施用量は、対象植物（作物等）の種類、対象病害の種類、病害の発生程度、製剤形態、施用方法、施用時期、気象条件等によって変化し得るが、1アールあたり通常0.01～50g、好ましくは0.05～10gである。乳剤、水和剤、懸濁剤等を水で希釈して施用する場合、その施用濃度は、0.0001～3%、好ましくは0.0005～1%であり、粉剤、粒剤等はなんら希釈することなくそのまま施用する。

【0017】本発明化合物は、畑地、水田、果樹園、茶園、牧草地、芝生地等の農園芸用殺菌剤として用いることができ、他の農園芸用殺菌剤と混合して用いることにより、殺菌効力の増強をも期待できる。混合し得る他の農園芸用殺菌剤としては、たとえば、プロピコナゾール、トリアジメノール、プロクロラズ、ベンコナゾール、テブコナゾール、フルシラゾール、ジニコナゾール、ブロムコナゾール、エボキシコナゾール、ジフェノコナゾール、シアプロコナゾール、メトコナゾール、トリフルミゾール、テトラコナゾール、マイクロブタニル、フェンブコナゾール、ヘキサコナゾール、フルキンコナゾール、トリティコナゾール、ピテルタノール、イマザリル及びフルトリアホル等のアゾール系殺菌化合物、フェンプロピモルフ、トリデモルフ及びフェンプロピジン等の環状アミン系殺菌化合物、カルベンダジム、ベノミル、チアベンダゾール、チオファネートメチル等のベンズイミダゾール系殺菌化合物、プロシミドン、シアロディニル、ピリメタニル、ジエトフェンカルブ、チウラム、フルアジナム、マンコゼブ、イプロジオン、ビンクロゾリン、クロロタロニル、キャブタン、メバニピリム、フェンピクロニル、フルジオクソニル、ジクロフルアニド、フォルベット、クレソキシムメチル、アゾキシストロビン、トリフロキシストロビン、ピコキシストロビン、N-メチル- α -メトキシイミノ-2-〔(2,5-ジメチルフェノキシ)メチル〕フェニルアセトアミド、スピロキサミン、キノキシフェン、フェンヘキサミド、ファモキサドン、フェナミドン(RP-407213)、イプロヴァリカルブ等があげられる。

【0018】本発明化合物は、他の農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、除草剤、植物生長調節剤、肥料と混用または併用することもできる。かかる殺虫剤及び／または殺ダニ剤及び／または殺線虫剤としては、例えばフェントロチオン〔O, O-ジメチル O-(3-メチル-4-ニトロフェニル)ホスホロチオエート〕、フェニチオン〔O, O-ジメチル O-(3-メチル-4-(メチルチオ)フェニル)ホスホロチオエート〕、ダイアジノン〔O, O-ジエチル O-2-イソプロピル-6-メチルピリミジン-4-イルホスホロチオエート〕、クロルピリホス〔O, O-ジエチル O-3, 5, 6-トリクロロ-2-ピリジルホスホロチオエート〕、アセフェート〔O, S-ジメチルアセチルホスホラミドチオエート〕、メチダチオン〔S-2, 3-ジヒドロ-5-メトキシ-2-オキソ-1, 3, 4-チアジアゾール-3-イルメチル O, O-ジメチルホスホロジチオエート〕、ジスルホトン〔O, O-ジエチル S-2-エチルチオエチルホスホロチオエート〕、DDVP〔2, 2-ジクロロビニルジメチルホスフェート〕、スルプロホス〔O-エチル O-4-(メチルチオ)フェニル S-プロピルホスホロジチオエート〕、シアノホス〔O-4-シアノフェニル O, O-ジメチルホスホロチオエート〕、ジオキサベンゾホス〔2-メトキシ-4H-1, 3, 2-ベンゾジオキサホスフィニン-2-スルフィド〕、ジメトエート〔O, O-ジメチル S-(N-メチルカルバモイルメチル)ジチオホスフェート〕、フェントエート〔エチル 2-ジメトキシホスフィノチオイルチオ(フェニル)アセテート〕、マラチオン〔ジエチル(ジメトキシホスフィノチオイルチオ)サクシネート〕、トリクロロホン〔ジメチル 2, 2, 2-トリクロロ-1-ヒドロキシエチルホスホネート〕、アジンホスメチル〔S-3, 4-ジヒドロ-4-オキソ-1, 2, 3-ベンゾトリアジン-3-イルメチル O, O-ジメチルホスホロジチオエート〕、モノクロトホス〔ジメチル(E)-1-メチル-2-(メチルカルバモイル)ビニルホスフェート〕、エチオン〔O, O, O', O'-テトラエチル S, S'-メチレンビス(ホスホロジチオエート)〕、ホスチアゼート〔N-(O-メチル-S-sec-ブチル)ホスホリルチアゾリジン-2-オン〕等の有機リン系化合物、BPMC〔2-sec-ブチルフェニルメチルカルバメート〕、ペンフラカルブ〔エチル N-(2, 3-ジヒドロ-2, 2-ジメチルベンゾフラン-7-イルオキシカルボニル(メチル)アミノチオ)-N-イソプロピル- β -アラニネート〕、プロボキスル〔2-イソプロボキシフェニル N-メチルカルバメート〕、カルボスルファン〔2, 3-ジヒドロ-2, 2-ジメチル-7-ベンゾ〔b〕フラニル N-ジブチルアミノチオ-N-メチルカルバメート〕、カルバリル〔1-ナフチル N-メチルカルバメート〕、メソミル〔S-メチル-N-〔(メチルカルバ

モイル) オキシ] チオアセトイミデート]、エチオフェンカルブ〔2-(エチルチオメチル) フェニルメチルカーバメート〕、アルジカルブ〔2-メチル-2-(メチルチオ) プロピオンアルデヒド O-メチルカルバモイルオキシム〕、オキサミル〔N, N-ジメチル-2-メチルカルバモイルオキシイミノ-2-(メチルチオ) アセタミド〕、フェノチオカルブ〔S-4-フェノキシベンチル-N, N-ジメチルチオカーバメート等のカーバメート系化合物、エトフェンプロックス〔2-(4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピル-3-フェノキシベンジルエーテル〕、フェンバレレート〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (RS)-2-(4-クロロフェニル)-3-メチルブチレート〕、エスフェンバレレート〔(S)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (S)-2-(4-クロロフェニル)-3-メチルブチレート〕、フェンプロパトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル 2, 2, 3, 3-テトラメチルシクロプロパンカルボキシレート〕、シベルメトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (1RS, 3RS)-3-(2, 2-ジクロロビニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート〕、ベルメトリン〔3-フェノキシベンジル (1RS, 3RS)-3-(2, 2-ジクロロビニル)-2, 2-メチルシクロプロパンカルボキシレート〕、シハロトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (Z)-(1RS, 3RS)-3-(2-クロロ-3, 3-トリフルオロプロペニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート〕、デルタメトリン〔(S)- α -シアノ-m-フェノキシベンジル (1R, 3R)-3-(2, 2-ジプロモビニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート〕、シクロプロスリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (RS)-2, 2-ジクロロ-1-(4-エトキシフェニル) シクロプロパンカルボキシレート〕、フルバリネート〔 α -シアノ-3-フェノキシベンジル N-(2-クロロ- α , α , α -トリフルオロ-p-トリル)-D-バリネート〕、ピフェンスリン〔2-メチルピフェニル-3-イルメチル (Z)-(1RS)-cis-3-(2-クロロ-3, 3-トリフルオロプロ-1-エニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシラート〕、アクリナスリン〔(1R-{1 α (S*), 3 α (Z)})〕-2, 2-ジメチル-3-(3-オキソ-3-(2, 2, 2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル) エトキシ-1-プロペニル) シクロプロパンカルボン酸シアノ(3-フェノキシフェニル) メチルエステル〕、2-メチル-2-(4-プロモジフルオロメトキシフェニル) プロピル(3-フェノキシベンジル) エーテル、トラロメスリン〔(S)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (1R)-シス-3-(1, 2, 2, 2-テ

ラプロモエチル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート〕、シラフルオフエン〔(4-エトキシフェニル(3-(4-フルオロ-3-フェノキシフェニル) プロピル) ジメチルシラン) 等のビスロイド化合物、プロプロフェジン(2- α -ブチルイミノ-3-イソプロピル-5-フェニル-1, 3, 5-トリアジアジナン-4-オン) 等のチアジアジン誘導体、ニトロイミダゾリジン誘導体、カルタップ(S, S'-(2-ジメチルアミノトリメチレン) ビス(チオカーバメート))、チオシクラム〔N, N-ジメチル-1, 2, 3-トリチアン-5-イルアミン〕、ペンスルタップ〔S, S'-(2-ジメチルアミノトリメチレン ジ(ベンゼンチオサルフォネート)) 等のネライストキシン誘導体、N-シアノ-N'-メチル-N'-(6-クロロ-3-ビリジルメチル) アセトアミジン等のN-シアノアミジン誘導体、エンドスルファン〔6, 7, 8, 9, 10, 10-ヘキサクロ-1, 5, 5a, 6, 9, 9a-ヘキサヒドロ-6, 9-メタノ-2, 4, 3-ベンゾジオキサチエピンオキサイド〕、gamma-BHC(1, 2, 3, 4, 5, 6-ヘキサクロシクロヘキサン)、1, 1-ビス(クロロフェニル)-2, 2, 2-トリクロロエタノール等の塩素化炭化水素化合物、クロルフルアズロン〔1-(3, 5-ジクロロ-4-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルビリジン-2-イルオキシ) フェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア〕、テフルベンズロン〔1-(3, 5-ジクロロ-2, 4-ジフルオロフェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア〕、フルフェノクスロン〔1-(4-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルフェノキシ)-2-フルオロフェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア〕等のベンゾイルフェニルウレア系化合物、アミトラズ〔N, N'-(メチルイミノ) ジメチリジン〕ジ-2, 4-キシリジン〕、クロルジメホルム〔N'-(4-クロロ-2-メチルフェニル)-N, N-ジメチルメタニミダミド〕等のホルムアミジン誘導体、ジアフェンチウロン〔N-(2, 6-ジイソプロピル-4-フェノキシフェニル)-N'- α -ブチルカルボジイミド〕等のチオ尿素誘導体、フェニルピラゾール系化合物、テプフェノジド〔N- α -ブチル-N'-(4-エチルベンゾイル)-3, 5-ジメチルベンゾヒドラジド〕、4-プロモ-2-(4-クロロフェニル)-1-エトキシメチル-5-トリフルオロメチルピロ-3-カルボニトリル、プロモプロビレート〔イソプロピル 4, 4'-ジプロモベンジレート〕、テトラジホン〔4-クロロフェニル 2, 4, 5-トリクロロフェニルスルホン〕、キノメチオネート〔S, S-6-メチルキノキサリン-2, 3-ジイルジチオカルボネート〕、プロバルゲイト〔2-(4- α -ブチルフェノキシ) シクロヘキシル プロア-2-イルスルファイト〕、フェンブタティン オキシド〔ビス〔トリス(2

ーメチル-2-フェニルプロピル) ティン) オキシド]、ヘキシチアゾクス〔(4RS, 5RS)-5-(4-クロロフェニル)-N-クロロヘキシル-4-メチル-2-オキソ-1, 3-チアゾリジン-3-カルボキサミド〕、クロフェンテジン〔3, 6-ビス(2-クロロフェニル)-1, 2, 4, 5-テトラジン、ピリダチオベン〔2-ト-ブチル-5-(4-ト-ブチルベンジルチオ)-4-クロロピリダジン-3(2H)-オン〕、フェンピロキシメート〔ト-ブチル(E)-4-〔(1, 3-ジメチル-5-フェノキシピラゾール-4-イル)メチレンアミノオキシメチル〕ベンゾエート〕、テブフェンピラド〔N-4-ト-ブチルベンジル-4-クロロ-3-エチル-1-メチル-5-ピラゾールカルボキサミド〕、ポリナクチンコンプレックス〔テトラナクチン、ジナクチン、トリナクチン〕、ミルベメクチン、アベルメクチン、イバーメクチン、アザジラクチン〔AZAD〕、ピリミジフェン〔5-クロロ-N-〔2-(4-(2-エトキシエチル)-2, 3-ジメチルフェノキシ)エチル〕-6-エチルピリミジン-4-アミン、ピメトロジン〔2, 3, 4, 5-テトラヒドロ-3-オキソ-4-〔(ピリジン-3-イル)-メチレンアミノ〕-6-メチル-1, 2, 4-トリアジン等〕があげられる。

【0019】本発明化合物により防除することができる植物病害としては例えば以下のような病害をあげることができる。

イネのいもち病 (*Pyricularia oryzae*)、ごま葉枯病 (*Cochliobolus miyabeanus*)、紋枯病 (*Rhizoctonia solani*)、ムギ類のうどんこ病 (*Erysiphe graminis*)、赤かび病 (*Gibberella zeae*)、さび病 (*Puccinia striiformis*, *P. graminis*, *P. recondita*, *P. hordei*)、雪腐病 (*Typhula* sp., *Micronectriella nivalis*)、裸黒穂病 (*Ustilago tritici*, *U. nuda*)、なまぐさ黒穂病 (*Tilletia caries*)、眠紋病 (*Pseudocercospora herpotrichoides*)、雲形病 (*Rhynchosporium secalis*)、葉枯病 (*Septoria tritici*)、ふ枯病 (*Leptosphaeria nodorum*)、カンキツ類の黒点病 (*Diaporthe citri*)、そうか病 (*Elsinoe fawcetti*)、果実腐敗病 (*Penicillium digitatum*, *P. italicum*)、リンゴのモニリア病 (*Sclerotinia mali*)、腐らん病 (*Valsa mali*)、うどんこ病 (*Podosphaera leucotricha*)、斑点落葉病 (*Alternaria mali*)、黒星病 (*Venturia inaequalis*)、ナシの黒星病 (*Venturia nashicola*, *V. pirina*)、黒斑病 (*Alternaria kikuchiana*)、赤星病 (*Gymnosporangium haraeanaum*)、モモの灰星病 (*Sclerotinia cinerea*)、黒星病 (*Cladosporium carpophilum*)、фомオブシス腐敗病 (*Phomopsis* sp.)、ブドウの黒とう病 (*Elsinoe ampelina*)、晩腐病 (*Glomerella cingulata*)、うどんこ病 (*Uncinula necator*)、さび病 (*Phakopsora ampelopsidis*)、ブラックロット病 (*Guignardia bidwellii*)、べと病 (*Plasmop*

ra viticola)、カキの炭そ病 (*Gloeosporium kaki*)、落葉病 (*Cercospora kaki*, *Mycosphaerella nawae*)、ウリ類の炭そ病 (*Colletotrichum lagenarium*)、うどんこ病 (*Sphaerotheca fuliginea*)、つる枯病 (*Mycosphaerella melonis*)、つる割病 (*Fusarium oxysporum*)、べと病 (*Pseudoperonospora cubensis*)、疫病 (*Phytophthora* sp.)、苗立枯病 (*Pythium* sp.)、トマトの輪紋病 (*Alternaria solani*)、葉かび病 (*Cladosporium fulvum*)、疫病 (*Phytophthora infestans*)、ナスの褐紋病 (*Phomopsis vexans*)、うどんこ病 (*Erysiphe cichoracearum*)、アブラナ科野菜の黒斑病 (*Alternaria japonica*)、白斑病 (*Cercospora brassicae*)、ネギのさび病 (*Puccinia allii*)、ダイズの紫斑病 (*Cercospora kikuchii*)、黒とう病 (*Elsinoe glycines*)、黒点病 (*Diaporthe phaseolorum* var. *sojae*)、インゲンの炭そ病 (*Colletotrichum lindemthianum*)、ラッカセイの黒渋病 (*Cercospora personata*)、褐斑病 (*Cercospora arachidicola*)、エンドウのうどんこ病 (*Erysiphe pisi*)、ジャガイモの夏疫病 (*Alternaria solani*)、疫病 (*Phytophthora infestans*)、イチゴのうどんこ病 (*Sphaerotheca humuli*)、チャの網もち病 (*Exobasidium reticulatum*)、白星病 (*Elsinoe leucospila*)、タバコの赤星病 (*Alternaria longipes*)、うどんこ病 (*Erysiphe cichoracearum*)、炭そ病 (*Colletotrichum tabacum*)、べと病 (*Peronospora tabacina*)、疫病 (*Phytophthora nicotianae*)、テンサイの褐斑病 (*Cercospora beticola*)、バラの黒星病 (*Diplocarpon rosae*)、うどんこ病 (*Sphaerotheca pannosa*)、キクの褐斑病 (*Septoria chrysanthemi-indici*)、白さび病 (*Puccinia horiana*)、種々の作物の灰色かび病 (*Botrytis cinerea*)、菌核病 (*Sclerotinia sclerotiorum*)等

【0020】

【実施例】以下、本発明を製造例、製剤例及び試験例等によりさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例のみに限定されるものではない。まず、本発明化合物の製造例および本発明化合物の製造中間体の製造例を、各々製造例および参考製造例にて示す。尚、本発明化合物の番号は後記表1～表21に記載の化合物番号である。

【0021】製造例1

N-(2-ブロモ-3-メチルフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド300mg (0.828mmol)、4-クロロフェニルボロン酸146mg (1.07mmol)、燐酸三カリウム水和物880mg (4.16mmol)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体34mg (0.042mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル4.5mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲ

ルカラムクロマトグラフィー (n-ヘキサン : 酢酸エチル = 2 : 8 から 0 : 10 で溶出) に付し、 N- (4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物 1-6) 139mg を得た。

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.16 (1H, d, J = 8.2 Hz)、7.78 (1H, s)、7.44-7.48 (2H, m)、7.32 (1H, t, J = 7.9 Hz)、7.22 (1H, s)、7.14-7.17 (2H, m)、7.09 (1H, d, J = 7.5 Hz)、3.92 (3H, s)、2.03 (3H, s)

【 0022 】 製造例 2 ~ 5

製造例 1 と同様の方法で下記の目的物を得た。

N- (6-メチル-ビフェニル-2-イル) -1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物 1-1)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.24 (1H, d, J = 8.2 Hz)、7.67 (1H, s)、7.41-7.51 (3H, m)、7.20-7.33 (4H, m)、7.06 (1H, d, J = 7.6 Hz)、3.89 (3H, s)、2.03 (3H, s)

【 0023 】 N- (4'-フルオロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物 1-5)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.20 (1H, d, J = 8.2 Hz)、7.79 (1H, s)、7.27-7.40 (2H, m)、7.18-7.20 (4H, m)、7.09 (1H, d, J = 7.6 Hz)、3.92 (3H, s)、2.02 (3H, s)

【 0024 】 N- (4'-トリフルオロメチル-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物 1-9)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.17 (1H, d, J = 8.2 Hz)、7.80 (1H, s)、7.75 (2H, d, J = 8.2 Hz)、7.3-7.4 (3H, m)、7.1-7.2 (2H, m)、3.91 (3H, s)、2.03 (3H, s)

【 0025 】 N- (4'-メチル-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物 1-8)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.24 (1H, d, J = 8.2 Hz)、

7.68 (1H, s)、7.26-7.35 (4H, m)、7.06-7.13 (3H, m)、3.90 (3H, s)、2.41 (3H, s)、2.04 (3H, s)

【 0026 】 製造例 6

2-アミノ-4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イルアミン 220mg (1mmol)、トリエチルアミン 120mg (1.2mmol) および THF 3ml を混合後、2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド 230mg (1mmol) を氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約 1 時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥 (硫酸ナトリウム) した後、減圧下において溶媒を留去し、残渣を n-ヘキサンで洗浄後濾過して、N- (4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド (本発明化合物 2-6) 260mg を得た。

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.19 (1H, d, J = 8.2 Hz)、7.47 (2H, d, J = 8.4 Hz)、7.3-7.4 (2H, m)、7.1-7.2 (3H, m)、2.70 (3H, s)、2.04 (3H, s)

【 0027 】 製造例 7 および 8

製造例 6 と同様の方法で下記の目的物を得た。

2-クロロ-N- (4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -ニコチンアミド (本発明化合物 4-3)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.43 (1H, dd, J = 6.6、1.7 Hz)、8.33 (1H, d, J = 8.3 Hz)、8.17 (1H, dd, J = 9.5、1.8 Hz)、7.99 (1H, s)、7.46-7.49 (2H, m)、7.30-7.43 (2H, m)、7.19-7.22 (2H, m)、7.14 (1H, d, J = 7.7 Hz)、2.05 (3H, s)

【 0028 】 N- (4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル) -2-トリフルオロメチル-ベンズアミド (本発明化合物 5-5)

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

δ (ppm) : 8.21 (1H, d, J = 8.3 Hz)、7.66 (1H, d, J = 9.0 Hz)、7.30-7.58 (6H, m)、7.10-7.25 (3H, m)、6.95 (1H, s)、2.04 (3H, s)

【 0029 】 製造例 9

N- (2-ブロモ-3-メチル-フェニル) -2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド 300mg (0.77mmol)、4-フルオロフェニル硼酸 140mg (1.0mmol)、燐酸三カリウム水和物 820mg (3.85mmo

1)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体31mg(0.039mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル5mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出)に付し、N-(4'-トリフルオロメチル-6-メチル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-5)150mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.21(1H, d, J=8.3Hz)、7.30-7.36(2H, m)、7.11-7.21(5H, m)、2.69(3H, s)、2.03(3H, s)

【0030】製造例10~13

製造例9と同様の方法で下記の目的物を得た。

N-(4'-トリフルオロメチル-6-メチル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-9)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.2-8.3(1H, m)、7.75-7.79(2H, m)、7.33-7.45(3H, m)、7.18-7.25(3H, m)、2.68(3H, s)、2.04(3H, s)

【0031】N-(6-メチル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-1)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.10-8.25(1H, m)、7.30-7.52(5H, m)、7.19-7.25(2H, m)、7.13(1H, d, J=7.5Hz)、2.68(3H, s)、2.05(3H, s)

【0032】N-(4'-メチル-6-メチル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-8)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.25(1H, d, J=8.2Hz)、7.45(1H, s)、7.26-7.45(3H, m)、7.07-7.18(3H, m)、2.68(3H, s)、2.41(3H, s)、2.05(3H, s)

【0033】N-(4'-メトキシ-6-メチル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-10)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.25(1H, d, J=7.4Hz)、7.45(1H, s)、7.26-7.34(1H, m)、7.10-7.14(3H, m)、7.00-7.05(2H, m)、3.86(3H, s)、2.69(3H, s)、2.05(3H, s)

【0034】製造例14

N-(2-ブromo-3-メトキシフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド250mg(0.66mmol)、4-クロロフェニルボロン酸135mg(0.86mmol)、磷酸三カリウム水和物700mg(3.31mmol)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体27mg(0.033mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル4mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出)に付し、N-(4'-クロロ-6-メトキシ-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-60)185mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 7.97(1H, d, J=8.4Hz)、7.77(1H, s)、7.43-7.45(2H, m)、7.37(1H, t, J=8.3Hz)、7.29(1H, s)、7.18-7.25(2H, m)、6.80(1H, d, J=8.2Hz)、3.92(3H, s)、3.73(3H, s)

【0035】製造例15

4'-クロロ-6-クロロ-2-イルアミン500mg(2.1mmol)、トリエチルアミン250mg(2.5mmol)、およびTHF5mlを混合後、1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド450mg(2.1mmol)を氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約1時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥(硫酸ナトリウム)した後、減圧下において溶媒を留去し、残渣を薄層シリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:1で溶出)に付して、N-(4'-クロロ-6-クロロ-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-89)110mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.32(1H, d, J=8.1Hz)、7.80(1H, s)、7.47-7.50(2H, m)、7.19-7.40(5H, m)、3.93(3H, s)

【0036】参考製造例1

1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸1.35g (6.95mmol)、塩化チオニル1.24g (10.4mmol)、ジメチルホルムアミド25mg (0.34mmol) およびトルエン5.4mlの混合物を90℃で1時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライドを得た。これと2-ブロモ-3-メチルアニリン1.42g (7.63mmol)、ジイソプロピルエチルアミン2.69g (14.5mmol) およびトルエン10mlの混合物に0℃で滴下し、0℃で30分ついで室温で5時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を5%希塩酸、水、3%苛性ソーダ水、飽和塩化アンモニウム水および飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、濃縮し、得られた粗結晶を冷却したn-ブチルメチルエーテルおよびヘキサンで洗浄後乾燥してN-(2-ブロモ-3-メチルフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド2.22gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.21 (2H, d), 8.00 (1H, s), 7.22~7.27 (1H, m), 7.05 (1H, d, $J=7.6\text{ Hz}$), 4.02 (3H, s), 2.44 (3H, s)

【0037】参考製造例2

2-ブロモ-3-メチルニトロベンゼン2.0g (9.26mmol)、4-クロロフェニルボロン酸1.51g (11.1mmol)、燐酸三カリウム水和物9.8g (46.2mmol)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体0.38g (0.46mmol) およびエチレングリコールジメチルエーテル30mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出)に付し、4'-クロロ-6-メチル-2-ニトロビフェニル1.81gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 7.7 (1H, d), 7.5 (1H, d), 7.40~7.42 (3H, m), 7.11~7.14 (2H, m), 2.13 (3H, s)

【0038】参考製造例3

4'-クロロ-6-メチル-2-ニトロビフェニル(参考製造例2)11.47g (46.33mmol)、5%Pt/炭素0.35gおよびモノクロルベンゼン120mlの混合物に、80~100℃で抱水ヒドラジン(5.87g, 116mmol)を滴下後、同温度で2.5時間攪拌した。得られた混合物を室温まで冷却

し、クロロホルムおよび水を加え、セライトをプレコートしたグラスフィルターで不溶物を濾別した。ろ液の有機層を分離し、減圧下において溶媒を留去し、残渣をn-ヘキサンで洗浄後、濾別し乾燥して、4'-クロロ-6-メチル-2-ビフェニル-2-イルアミン8.27gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 7.43~7.46 (2H, m), 7.18~7.25 (2H, m), 7.06 (1H, t, $J=7.8\text{ Hz}$), 6.69 (1H, d, $J=7.5\text{ Hz}$), 6.62 (1H, d, $J=7.9\text{ Hz}$), 3.41 (2H, s), 1.99 (3H, s)

【0039】参考製造例4

2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸10.55g (50.0mmol)、塩化チオニル9.00g (75.0mmol) およびトルエン100mlの混合物を50-60℃で1時間ついで80℃で4時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド11.15gを得た。この2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド2.34g (10.2mmol)を2-ブロモ-3-メチルアニリン2.0g (10.2mmol)、トリエチルアミン1.24g (12.2mmol) およびテトラヒドロフラン20mlの混合物に0℃で仕込み、0℃で30分ついで室温で1~2時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、濃縮し得られた粗結晶をn-ヘキサンで洗浄後乾燥してN-(2-ブロモ-3-メチルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド2.90gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.32 (1H, s), 8.20 (1H, d, $J=8.2\text{ Hz}$), 7.26 (1H, t, $J=7.8\text{ Hz}$), 7.09 (1H, d, $J=7.0\text{ Hz}$), 2.78 (3H, s), 2.45 (3H, s)

【0040】参考製造例5

1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸8.0g (17.5mmol)、塩化チオニル7.4g (62.0mmol) およびトルエン100mlの混合物を50-60℃で1時間ついで80℃で4時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド6.0gを得た。この1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド0.37g (1.73mmol)を2-ブロモ-3-メチルアニリン0.35g (1.73mmol)、トリエチルアミン0.21g (2.10mmol) およびテトラヒドロフラン4mlの混合物

に氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約 1 時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥 (硫酸ナトリウム) した後、減圧下において溶媒を留去し、残渣を n-ヘキサンで洗浄後濾過して、N-(2-ブロモ-3-メトキシフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド 4.7 g を得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

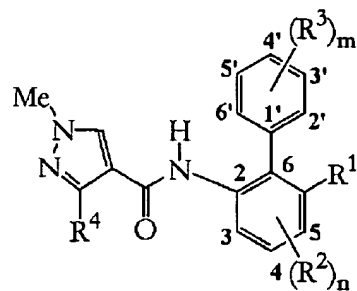
δ (ppm): 8.23 (1H, s), 8.06 (1H, d, $J=8.7\text{Hz}$), 7.99 (1H, s), 7.31 (1H, t, $J=8.3\text{Hz}$), 6.72 (1H, d, $J=9.6\text{Hz}$), 4.01 (3H, s), 3.92 (3H, s)

【0041】次に本発明化合物の例を化合物番号と共に

表 1 ~ 表 21 に示す。

一般式 化 7

【化 7】



で示される化合物。

【表 1】

番号	R^1	$(\text{R}^2)_n$	$(\text{R}^3)_m$	R^4
1-1	Me	-	-	CF_3
1-2	Me	-	2'-F	CF_3
1-3	Me	-	3'-F	CF_3
1-4	Me	-	3'-Cl	CF_3
1-5	Me	-	4'-F	CF_3
1-6	Me	-	4'-Cl	CF_3
1-7	Me	-	4'-Br	CF_3
1-8	Me	-	4'-Me	CF_3
1-9	Me	-	4'- CF_3	CF_3
1-10	Me	-	4'-OMe	CF_3
1-11	Me	-	4'- OCP_3	CF_3
1-12	Me	-	4'-SMe	CF_3
1-13	Me	-	3', 4'-diCl	CF_3
1-14	Me	-	3'-Me-4'-Cl	CF_3
1-15	Me	-	3'-F-4'-Cl	CF_3
1-16	Me	-	3'-Cl-4'- CF_3	CF_3
1-17	Me	-	2', 4'-diF	CF_3
1-18	Me	-	2', 5'-diF	CF_3
1-19	Me	-	4'-SiMe ₃	CF_3
1-20	Me	-	-	CHF_2
1-21	Me	-	4'-F	CHF_2
1-22	Me	-	4'-Cl	CHF_2
1-23	Me	-	4'-Me	CHF_2
1-24	Me	-	4'- CF_3	CHF_2
1-25	Et	-	-	CF_3

【表 2】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-26	Et	-	4'-F	CF ₃
1-27	Et	-	4'-Cl	CF ₃
1-28	Et	-	4'-Me	CF ₃
1-29	Et	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-30	CF ₃	-	-	CF ₃
1-31	CF ₃	-	4'-F	CF ₃
1-32	CF ₃	-	4'-Cl	CF ₃
1-33	CF ₃	-	4'-Me	CF ₃
1-34	CF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-35	c-Pr	-	-	CF ₃
1-36	c-Pr	-	4'-F	CF ₃
1-37	c-Pr	-	4'-Cl	CF ₃
1-38	c-Pr	-	4'-Me	CF ₃
1-39	c-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-40	CH=CH ₂	-	-	CF ₃
1-41	CH=CH ₂	-	4'-F	CF ₃
1-42	CH=CH ₂	-	4'-Cl	CF ₃
1-43	CH=CH ₂	-	4'-Me	CF ₃
1-44	CH=CH ₂	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-45	-C≡CH	-	-	CF ₃
1-46	-C≡CH	-	4'-F	CF ₃
1-47	-C≡CH	-	4'-Cl	CF ₃
1-48	-C≡CH	-	4'-Me	CF ₃
1-49	-C≡CH	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-50	Me	4-F	-	CF ₃

【表3】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-51	Me	4-F	4'-F	CF ₃
1-52	Me	4-F	4'-Cl	CF ₃
1-53	Me	4-F	4'-Me	CF ₃
1-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃
1-55	OMe	-	-	CF ₃
1-56	OMe	-	2'-F	CF ₃
1-57	OMe	-	3'-F	CF ₃
1-58	OMe	-	3'-Cl	CF ₃
1-59	OMe	-	4'-F	CF ₃
1-60	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
1-61	OMe	-	4'-Br	CF ₃
1-62	OMe	-	4'-Me	CF ₃
1-63	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-64	OMe	-	4'-OMe	CF ₃
1-65	OMe	-	4'-OCF ₃	CF ₃
1-66	OMe	-	4'-SMe	CF ₃
1-67	OMe	-	3', 4'-diCl	CF ₃
1-68	OMe	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃
1-69	OMe	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃
1-70	OMe	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃
1-71	OMe	-	2', 4'-diF	CF ₃
1-72	OMe	-	2', 5'-diF	CF ₃
1-73	OMe	-	4'-SiMe ₃	CF ₃
1-74	Oi-Pr	-	-	CF ₃
1-75	Oi-Pr	-	4'-F	CF ₃

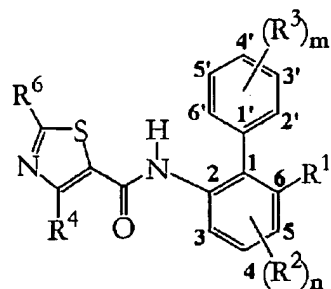
【表4】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-76	Oi-Pr	-	4'-Cl	CF ₃
1-77	Oi-Pr	-	4'-Me	CF ₃
1-78	Oi-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-79	OCF ₃	-	-	CF ₃
1-80	OCF ₃	-	4'-F	CF ₃
1-81	OCF ₃	-	4'-Cl	CF ₃
1-82	OCF ₃	-	4'-Me	CF ₃
1-83	OCF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-84	Cl	-	-	CF ₃
1-85	Cl	-	2'-F	CF ₃
1-86	Cl	-	3'-F	CF ₃
1-87	Cl	-	3'-Cl	CF ₃
1-88	Cl	-	4'-F	CF ₃
1-89	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
1-90	Cl	-	4'-Br	CF ₃
1-91	Cl	-	4'-Me	CF ₃
1-92	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-93	Cl	-	4'-OMe	CF ₃
1-94	Cl	-	4'-OCF ₃	CF ₃
1-95	Cl	-	4'-SMe	CF ₃
1-96	Cl	-	3', 4'-diCl	CF ₃
1-97	Cl	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃
1-98	Cl	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃
1-99	Cl	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃
1-100	Cl	-	2', 4'-diF	CF ₃

【表5】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-101	Cl	-	2', 5'-diF	CF ₃
1-102	Cl	-	4'-SiMe ₃	CF ₃

一般式 化8
【化8】



で示される化合物。

【表 6】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵
2-1	Me	-	-	CF ₃	Me
2-2	Me	-	2'-F	CF ₃	Me
2-3	Me	-	3'-F	CF ₃	Me
2-4	Me	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-5	Me	-	4'-F	CF ₃	Me
2-6	Me	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-7	Me	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-8	Me	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-9	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-10	Me	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-11	Me	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-12	Me	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-13	Me	-	3', 4'-diCl	CF ₃	Me
2-14	Me	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-15	Me	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-16	Me	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-17	Me	-	2', 4'-diF	CF ₃	Me
2-18	Me	-	2', 5'-diF	CF ₃	Me
2-19	Me	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me
2-20	Me	-	-	CHF ₂	Me
2-21	Me	-	4'-F	CHF ₂	Me
2-22	Me	-	4'-Cl	CHF ₂	Me
2-23	Me	-	4'-Me	CHF ₂	Me
2-24	Me	-	4'-CF ₃	CHF ₂	Me
2-25	Et	-	-	CF ₃	Me

【表 7】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-26	Et	-	4'-F	CF ₃	Me
2-27	Et	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-28	Et	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-29	Et	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-30	CF ₃	-	-	CF ₃	Me
2-31	CF ₃	-	4'-F	CF ₃	Me
2-32	CF ₃	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-33	CF ₃	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-34	CF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-35	c-Pr	-	-	CF ₃	Me
2-36	c-Pr	-	4'-F	CF ₃	Me
2-37	c-Pr	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-38	c-Pr	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-39	c-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-40	CH=CH ₂	-	-	CF ₃	Me
2-41	CH=CH ₂	-	4'-F	CF ₃	Me
2-42	CH=CH ₂	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-43	CH=CH ₂	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-44	CH=CH ₂	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-45	-C≡CH	-	-	CF ₃	Me
2-46	-C≡CH	-	4'-F	CF ₃	Me
2-47	-C≡CH	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-48	-C≡CH	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-49	-C≡CH	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-50	Me	4-F	-	CF ₃	Me

【表8】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵
2-51	Me	4-F	4'-F	CF ₃	Me
2-52	Me	4-F	4'-Cl	CF ₃	Me
2-53	Me	4-F	4'-Me	CF ₃	Me
2-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-56	OMe	-	2'-F	CF ₃	Me
2-57	OMe	-	3'-F	CF ₃	Me
2-58	OMe	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-59	OMe	-	4'-F	CF ₃	Me
2-60	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-61	OMe	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-62	OMe	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-63	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-64	OMe	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-65	OMe	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-66	OMe	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-67	OMe	-	3', 4'-diCl	CF ₃	Me
2-68	OMe	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-69	OMe	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-70	OMe	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-71	OMe	-	2', 4'-diF	CF ₃	Me
2-72	OMe	-	2', 5'-diF	CF ₃	Me
2-73	OMe	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me
2-74	Oi-Pr	-	-	CF ₃	Me
2-75	Oi-Pr	-	4'-F	CF ₃	Me

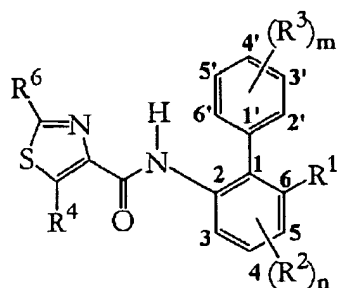
【表9】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-76	Ol-Pr	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-77	Ol-Pr	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-78	Ol-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-79	OCF ₃	-	-	CF ₃	Me
2-80	OCF ₃	-	4'-F	CF ₃	Me
2-81	OCF ₃	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-82	OCF ₃	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-83	OCF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-84	Cl	-	-	CF ₃	Me
2-85	Cl	-	2'-F	CF ₃	Me
2-86	Cl	-	3'-F	CF ₃	Me
2-87	Cl	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-88	Cl	-	4'-F	CF ₃	Me
2-89	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-90	Cl	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-91	Cl	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-92	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-93	Cl	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-94	Cl	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-95	Cl	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-96	Cl	-	3', 4'-diCl	CF ₃	Me
2-97	Cl	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-98	Cl	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-99	Cl	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-100	Cl	-	2', 4'-diF	CF ₃	Me

【表10】

2-101	Cl	-	2', 5'-diF	CF ₃	Me
2-102	Cl	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me

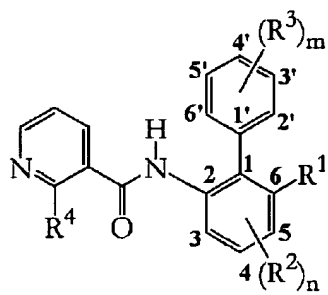
一般式 化9
【化9】



で示される化合物。
【表11】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
3-1	Me	-	-	CF ₃	Me
3-2	Me	-	4'-F	CF ₃	Me
3-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
3-6	OMe	-	-	CF ₃	Me
3-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	Me
3-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
3-11	Cl	-	-	CF ₃	Me
3-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	Me
3-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me

一般式 化10
【化10】

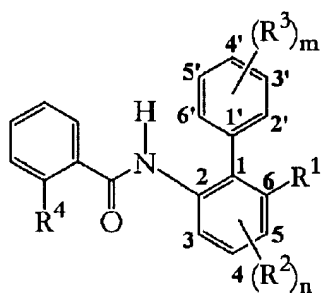


で示される化合物。
【表12】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
4-1	Me	-	-	Cl
4-2	Me	-	4'-F	Cl
4-3	Me	-	4'-Cl	Cl
4-4	Me	-	4'-Me	Cl
4-5	Me	-	4'-CF ₃	Cl
4-6	Me	-	4'-OMe	Cl
4-7	Me	-	4'-OCF ₃	Cl
4-8	Me	-	4'-SMe	Cl
4-9	Me	-	-	CF ₃
4-10	Me	-	4'-F	CF ₃
4-11	Me	-	4'-Cl	CF ₃
4-12	Me	-	4'-Me	CF ₃
4-13	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
4-14	OMe	-	-	Cl
4-15	OMe	-	4'-F	Cl
4-16	OMe	-	4'-Cl	Cl
4-17	OMe	-	4'-Me	Cl
4-18	OMe	-	4'-CF ₃	Cl
4-19	Cl	-	-	Cl
4-20	Cl	-	4'-F	Cl
4-21	Cl	-	4'-Cl	Cl
4-22	Cl	-	4'-Me	Cl
4-23	Cl	-	4'-CF ₃	Cl

一般式 化11
【化11】

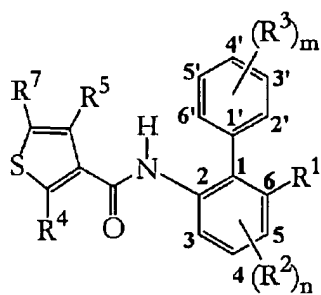
で示される化合物。
【表13】



番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
5-1	Me	-	-	CF ₃
5-2	Me	-	4'-F	CF ₃
5-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃
5-4	Me	-	4'-Me	CF ₃
5-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
5-6	OMe	-	-	CF ₃
5-7	OMe	-	4'-F	CF ₃
5-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
5-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃
5-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
5-11	Cl	-	-	CF ₃
5-12	Cl	-	4'-F	CF ₃
5-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
5-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃
5-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃

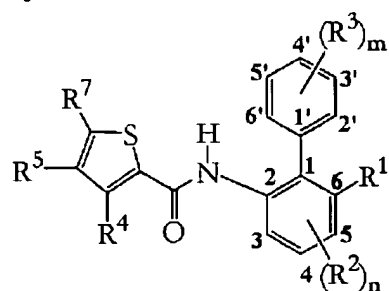
一般式 化12
【化12】

で示される化合物。
【表14】



番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶	R ⁷
6-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
6-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
6-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
6-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
6-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
6-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

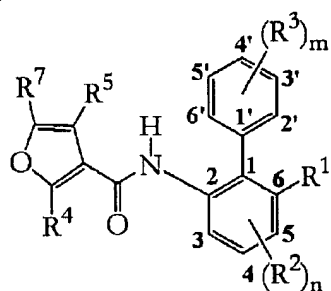
一般式 化13
【化13】



で示される化合物。
【表15】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵	R ⁷
7-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
7-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
7-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
7-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
7-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
7-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

一般式 化14
【化14】

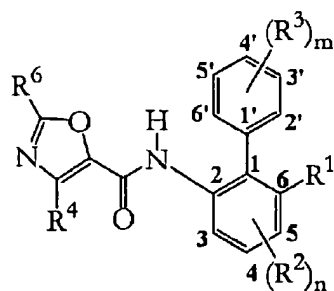


で示される化合物。
【表16】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵	R ⁷
8-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
8-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
8-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
8-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
8-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
8-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

一般式 化15

【化15】



で示される化合物。

【表17】

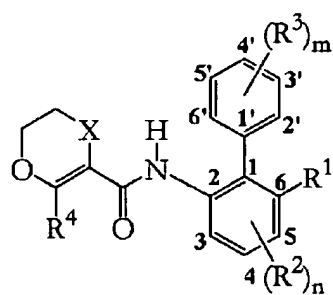
番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
9-1	Me	-	-	CF ₃
9-2	Me	-	4'-F	CF ₃
9-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃
9-4	Me	-	4'-Me	CF ₃
9-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
9-6	OMe	-	-	CF ₃
9-7	OMe	-	4'-F	CF ₃
9-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
9-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃
9-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
9-11	Cl	-	-	CF ₃
9-12	Cl	-	4'-F	CF ₃
9-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
9-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃
9-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃

一般式 化16

【化16】

で示される化合物。

【表18】

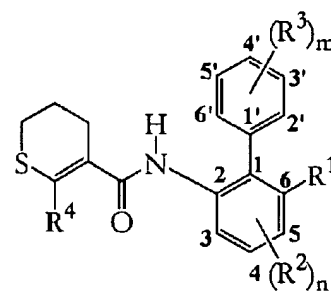
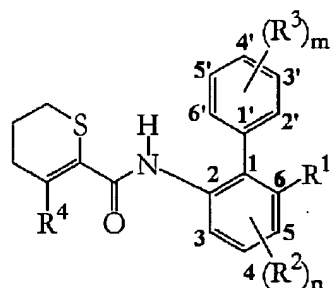


番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	X
10-1	Me	-	-	Me	S
10-2	Me	-	4'-F	Me	S
10-3	Me	-	4'-Cl	Me	S
10-4	Me	-	4'-Me	Me	S
10-5	Me	-	4'-CF ₃	Me	S
10-6	OMe	-	-	Me	S
10-7	OMe	-	4'-F	Me	S
10-8	OMe	-	4'-Cl	Me	S
10-9	OMe	-	4'-Me	Me	S
10-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me	S
10-11	Cl	-	-	Me	S
10-12	Cl	-	4'-F	Me	S
10-13	Cl	-	4'-Cl	Me	S
10-14	Cl	-	4'-Me	Me	S
10-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me	S
10-16	Me	-	-	Me	CH ₂
10-17	Me	-	4'-F	Me	CH ₂
10-18	Me	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-19	Me	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-20	Me	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂
10-21	OMe	-	-	Me	CH ₂
10-22	OMe	-	4'-F	Me	CH ₂
10-23	OMe	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-24	OMe	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-25	OMe	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂

【表19】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	X
10-26	Cl	-	-	Me	CH ₂
10-27	Cl	-	4'-F	Me	CH ₂
10-28	Cl	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-29	Cl	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-30	Cl	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂

一般式 化17
【化17】



で示される化合物。

【表21】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
12-1	Me	-	-	Me
12-2	Me	-	4'-F	Me
12-3	Me	-	4'-Cl	Me
12-4	Me	-	4'-Me	Me
12-5	Me	-	4'-CF ₃	Me
12-6	OMe	-	-	Me
12-7	OMe	-	4'-F	Me
12-8	OMe	-	4'-Cl	Me
12-9	OMe	-	4'-Me	Me
12-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me
12-11	Cl	-	-	Me
12-12	Cl	-	4'-F	Me
12-13	Cl	-	4'-Cl	Me
12-14	Cl	-	4'-Me	Me
12-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me

で示される化合物。
【表20】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
11-1	Me	-	-	Me
11-2	Me	-	4'-F	Me
11-3	Me	-	4'-Cl	Me
11-4	Me	-	4'-Me	Me
11-5	Me	-	4'-CF ₃	Me
11-6	OMe	-	-	Me
11-7	OMe	-	4'-F	Me
11-8	OMe	-	4'-Cl	Me
11-9	OMe	-	4'-Me	Me
11-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me
11-11	Cl	-	-	Me
11-12	Cl	-	4'-F	Me
11-13	Cl	-	4'-Cl	Me
11-14	Cl	-	4'-Me	Me
11-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me

一般式 化18
【化18】

【0042】尚、上記の表において、Meはメチル基を、Etはエチル基を、Prはプロピル基を、i-Prはイソプロピル基を、c-Prはシクロプロピル基を意味する。また置換基の前に付した数字は、ベンゼン環上の置換位置を表わす。

【0043】次に製剤例を示す。なお、部は重量部を表わし、本発明化合物は前記表1から表21に記載の番号で示す。

製剤例1

本発明化合物1-1～1-102、2-1～2-10

2、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々50部、リグニンスルホン酸カルシウム3部、ラウリル硫酸ナトリウム2部及び合成含水酸化珪素45部をよく粉碎混合することにより、各々の水和剤を得る。

製剤例2

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々20部とソルビタントリオレート1.5部とを、ポリビニルアルコール2部を含む水溶液28.5部と混合し、湿式粉碎法で微粉碎した後、この中に、キサンタンガム0.05部及びアルミニウムマグネシウムシリケート0.1部を含む水溶液40部を加え、さらにプロピレングリコール10部を加えて攪拌混合し各々のフロアブル製剤を得る。

製剤例3

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々2部、カオリンクレ-88部及びタルク10部をよく粉碎混合することにより、各々の粉剤を得る。

【0044】製剤例4

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々5部、ポリオキシエチレンステリルフェニルエーテル14部、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム6部及びキシレン75部をよく混合することにより、各々の乳剤を得る。

製剤例5

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々2部、合成含水酸化珪素1部、リグニンスルホン酸カ

ルシウム2部、ペントナイト30部及びカオリンクレ-65部をよく粉碎混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥することにより、各々の粒剤を得る。

製剤例6

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々10部、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩50部を含むホワイトカーボン35部、及び水55部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎することにより、各々のフロアブル製剤を得る。

【0045】次に、本発明化合物が農園芸用殺菌剤として有用であることを試験例で示す。なお、本発明化合物は表1~表21に記載の番号で示す。また、比較対象化合物として、N-(4'-クロロ-6-フルオロ-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(以下、化合物Aと記す。)を用いた。化合物AはWO-97-08148号公報に記載の化合物番号3.20の化合物である。本発明化合物の防除効果は、調査時の供試植物上の病斑の面積を肉眼観察し、無処理区の病斑の面積と本発明化合物処理区の病斑の面積を比較することにより下記の指数を用いて評価した。

5:病斑が全く認められない。

4:病斑面積が、無処理区の10%以下

3:病斑面積が、無処理区の11%~30%

2:病斑面積が、無処理区の31%~50%

1:病斑面積が、無処理区の51%~75%

0:病斑面積が、無処理区の76%以上

【0046】試験例1:キュウリ灰色かび病防除試験(予防効果)

プラスチックポットに砂壌土を詰め、キュウリ(相模半白)を播種し、温室内で12日間生育させた。その後、本発明化合物1-6、1-8、1-60、1-89、2-6、2-10及び化合物A(対象化合物)の各々を、製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で所定濃度(200ppmおよび50ppm)に希釈し、それを、そのキュウリの葉面に充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、灰色かび病菌胞子含有PDA培地をキュウリ葉面上に置き接種した。接種後10℃、多湿下に5日間置いた後、防除効果を調査した。結果を表22に示す。

【表22】

化合物番号	有効成分濃度	効力評価	有効成分濃度	効力評価
1-6	200ppm	5	50ppm	5
1-8	200ppm	5	50ppm	4
1-60	200ppm	5	50ppm	5
1-89	200ppm	5	50ppm	5
2-6	200ppm	4	50ppm	4
2-10	200ppm	4	50ppm	4
A (対象化合物)	200ppm	2	50ppm	0

【0047】試験例2：ダイコン黒すす病防除試験（予防効果）

プラスチックポットに砂壌土を詰め、ダイコン（早生40日大根）を播種し、温室内で5日間生育させた。本発明化合物1-6、1-8、1-60、1-89、2-6、2-10及び化合物A（対象化合物）の各々を、製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で所定濃度

（200ppmおよび50ppm）に希釈し、それを、そのダイコンに充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、キャベツ黒すす病菌の胞子を噴霧接種した。接種後23℃、多湿下に一晚置き、さらに温室内で3日置いた後、防除効果を調査した。結果を表23に示す。

【表23】

化合物番号	有効成分濃度	効力評価	有効成分濃度	効力評価
1-6	200ppm	5	50ppm	5
1-8	200ppm	4	50ppm	4
1-60	200ppm	4	50ppm	4
1-89	200ppm	5	50ppm	4
2-6	200ppm	5	50ppm	5
2-10	200ppm	5	50ppm	4
A (対象化合物)	200ppm	1	50ppm	0

【0048】試験例3：キュウリうどんこ病防除効果試験（予防効果）

プラスチックポットに砂壌土を詰め、キュウリ（相模半白）を播種し、温室内で12日間生育させた。本発明化合物1-5、1-6、1-8、1-9、1-89、2-6、4-3および5-5の各々を製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で希釈し所定濃度（500ppm）にし、それを、そのキュウリ葉面に充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、キュウリうどんこ

病の胞子を接種した。接種後23℃下に12日置いた後、防除効果を調査した。その結果、本発明化合物1-5、1-6、1-8、1-9、1-89、2-6、4-3および5-5処理区の植物上の病斑面積は、無処理区の病斑面積の10%以下であった。

【0049】

【発明の効果】本発明化合物は、優れた植物病害防除効力を有する。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

A01N 43/18
43/32
43/40
43/56
43/76

識別記号

101

F I

A01N 43/18
43/32
43/40
43/56
43/76

7-73-D' (参考)

A 4C062
4H006
101C 4H011
D

43/78	43/78	B
55/00	55/00	D
C O 7 D 213/82	C O 7 D 213/82	
231/14	231/14	
263/34	263/34	
277/32	277/32	
307/68	307/68	
309/28	309/28	
327/06	327/06	
333/38	333/38	
335/02	335/02	

F ターム(参考) 4C023 HA04 JA01
4C033 AD03 AD16 AD17
4C037 MA03
4C055 AA01 BA02 BA06 BA13 BA39
CA02 CA58 CB04 CB07 CB08
CB09 DA01
4C056 AA01 AB01 AC02 AD01 AE03
BA03 BB14 BC01
4C062 BB20
4H006 AA01 AB03 BJ50 BM10 BM30
BV74
4H011 AA01 BA01 BB06 BB08 BB09
BB10 BC01 BC03 BC07 BC18
BC19 BC20 DA02 DA15 DA16
DC01 DD03 DE15 DH03 DH14